

THÈSES

présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

pour obtenir

le grade de Docteur ès sciences physiques

par

Jean-Pierre BARRAT

PREMIÈRE THÈSE : Étude de la diffusion multiple cohérente de la lumière de résonance optique. Application au niveau 6^3P_1 du mercure.

DEUXIÈME THÈSE : Propositions données par la Faculté.

Soutenues le 20 mars 1959, devant la Commission d'examen.

JURY :

MM. A. KASTLER,	<i>Président.</i>
P. JACQUINOT,	} <i>Examineurs.</i>
M. LÉVY,	
J. BROSSEL,	

JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM

12, Place Henri-Bergson — PARIS (VIII^e)

1959

THÈSES

présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

pour obtenir

le grade de Docteur ès sciences physiques

par

Jean-Pierre BARRAT

PREMIÈRE THÈSE : Étude de la diffusion multiple cohérente de la lumière de résonance optique. Application au niveau 6^3P_1 du mercure.

DEUXIÈME THÈSE : Propositions données par la Faculté.

Soutenues le 20 mars 1959, devant la Commission d'examen.

JURY :

MM. A. KASTLER,	<i>Président.</i>
P. JACQUINOT,	} <i>Examineurs.</i>
M. LÉVY,	
J. BROSSEL,	

JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM

12, Place Henri-Bergson — PARIS (VIII^e)

1959



Faculté des Sciences de l'Université de Paris

Doyen M. J. PÉRÈS.

Professeurs.

M. G. JULIA	T Anal. supér. et Algèbre supér.	NORMANT	T Chimie organique.
FOCH	T Mécanique physique et expérim.	BENARD	T Chimie (P. C. B.).
De BROGLIE	T Théories physiques.	BUVAT	T Botanique (E. N. S.).
PRENANT	T Anatomie et Histol. comparées.	DUGUE	T Statistiques mathématiques.
PÉRÈS	T Mécanique des fluides et app.	GÉLOSO	T Chimie (S. P. C. N.).
M. CURIE	T Physique (S. P. C. N.).	SOULAIRAC	T Psychophysologie.
BARRABÉ	T Géol. structurale et Géol. appl.	ULRICH	T Physiologie végétale.
J. BOURCART	T Géog. phys. et Géol. dynam.	MARÉCHAL	T Optique théorique et appliquée.
PLANTEFOL	T Botanique.	KIRRMANN	T Théories chimiques.
GRASSÉ	T Évolution des êtres organisés.	CHADEFAUD	T Botanique.
PRÉVOST	T Chimie organique.	DESTRIAU	T Physique (M. P. C.).
BOULIGAND	T Appl. de l'analyse à la Géométrie.	M ^{lle} Le BRETON	T Physiologie générale.
CHAUDRON	T Chimie appliquée.	MM. SALEM	T Mathématiques générales.
WYART	T Minéralogie.	LELONG	T Mathématiques générales.
TEISSIER	T Zoologie.	DEVILLERS	T Anatomie et Histologie comparées.
MANGENOT	T Biologie végétale.	EHRESMANN	T Topologie algébrique.
P. AUGER	T Physique quantique et relativité.	FRANÇON	T Physique (S. P. C. N.).
MONNIER	T Physiologie générale.	GLANGEAUD	T Géographie physique et Géologie dynamique.
PIVETEAU	T Paléontologie.	GODEMENT	T Mathématiques (M. P. C.).
ROCARD	T Physique (E. N. S.).	PISOT	T Calcul des Probabilités.
H. CARTAN	T Mathématiques (E. N. S.).	E. ROCH	T Géologie.
LAFFITTE	T Chimie générale.	SCHATZMANN	T Astrophysique.
FAVARD	T Géométrie supérieure.	TERMIER	T Paléontologie stratigraphique.
COULOMB	T Physique du Globe.	ZAMANSKY	T Mathématiques générales.
M ^{lle} COUSIN	T Biologie animale (S. P. C. N.).	LENNUIER	T Physique (M. G. P.).
MM. CHRÉTIEN	T Chimie minérale.	RIZET	T Génétique.
P. DRACH	T Zoologie.	ROUTHIER	T Géologie appliquée.
KASTLER	T Physique (E. N. S.).	M ^{me} TONNELAT	T Théories physiques.
EPHRUSSI	T Génétique.	MM. DIXMIER	T Mathématiques (M. P. C.).
WURMSER	T Biologie physico-chimique.	SOUCHAY	T Chimie générale.
RIVIÈRE	T Géologie (S. P. C. N.).	AIGRAIN	T Electrotechnique.
GAUTHERET	Biologie végétale (P. C. B.).	BRUSSET	Chimie minérale.
LUCAS	T Recherches physiques.	M. LEVY	Physique théorique.
A. THOMAS	T Biologie cellulaire.	M ^{me} CHAIX	Chimie biologique.
ARNULF	T Optique appliquée.	M ^{me} HUREL-PY	Biologie végétale (P. C. B.).
M. MORAND	T Enseignement de Physique.	MM. PIAUX	Chimie (P. C. B.).
SOLEILLET	T Physique.	BRUN	Mécanique expér. des fluides.
FORTIER	T Mécanique expériment. des fluides.	LEDERER	T Chimie des subst. organiques nat.
DANJON	T Astronomie.	M ^{me} DUBREIL	T Mathématiques.
LAPORTE	T Physique générale et Radioactivité.	M ^{me} LELONG	T Mathématiques (E. N. S.).
JANET	T Méc. analytique et Méc. céleste.	MM. BELLAIR	T Géologie (S. P. C. N.).
PETIT	T Biologie maritime.	COTTE	T Physique (M. P. C.).
QUENEY	T Météorol. et Dynam. atmosphér.	J. E. DUBOIS	T Chimie (S. P. C. N.).
GALLIEN	T Embryologie.	LAMOTTE	Zoologie (E. N. S.).
EICHORN	T Biologie végétale (S. P. C. N.).	Le ROLLAND	Mécanique des fluides.
De CUGNAC	T Biologie végétale (S. P. C. N.).	André MICHEL	T Chimie (S. P. C. N.).
M ^{lle} CAUCHOIS	T Chimie Physique.	OLMER	T Énergétique générale.
MM. THELLIER	T Physique du Globe.	ROUAULT	T Physique générale.
L'HÉRITIER	T Génétique.	GAUTHIER	T Mécanique appliquée.
GRIVET	T Radioélectricité.	BARGHEWITZ	Chimie-Physique.
PONCIN	T Mécanique générale.	BROSSEL	Physique atomique.
DUBREIL	T Arithm. et Théorie des nombres.	BUSER	Biologie animale (P. C. B.).
QUELET	T Chimie organique.	CAMUS	Biologie végétale (P. C. B.).
CAGNIARD	T Géophysique appliquée.	CASTAING	Physique générale.
CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire.	CURIEN	Minéralogie et Cristallographie.
CUVILLIER	T Géologie struct. et Géologie appl.	MOYSE	Physiologie végétale.
JUNG	T Pétrographie.	NOIROT	Évolution des êtres organisés.
TRILLAT	T Micros. et Diffraction électronique.	PANNETIER	Chimie (S. P. C. N.).
WIEMANN	T Chimie organique et structurale.	POSSOMPES	Biologie animale (P. C. B.).
JACQUINOT	T Spectroscopie et Physique céleste.	PULLMANN	Chimie théorique.
VASSY	T Physique de l'atmosphère.	TEILLAC	Physique nucléaire et Radioactivité.
DESTOUCHES	T Théories physiques.	TONNELAT	Biologie physico-chimique.
M. PRUVOST	T Géologie.	VILLE	Économétrie.
AMIEL	T Chimie générale (P. C. B.).	WILLEMART	Chimie (P. C. B.).
HOCART	T Minéralogie.	DODÉ	T Chimie.
J. P. MATHIEU	T Physique (P. C. B.).	FREYMAN	T Physique (S. P. C. N.).
COUTEAUX	T Biologie animale (P. C. B.).	GUINOCHE	T Biologie végétale (Orsay).
MAY	T Biologie animale (P. C. B.).	ROLLET	T Chimie (P. C. B.).
CHOQUET	T Calcul différentiel et intégral.	JOSIEN	T Chimie (P. C. B.).
FELDMANN	T Biologie (P. C. B.).	MM. CHEVALLEY	T Géom. alg. et Théorie des groupes.
GUINIER	T Physique des solides.	ARNOULT	T Physique (Orsay).
JOST	T Physiologie comparée.	CHAPELLE	T Physique (Orsay).
FORTET	T Calcul des probabilités.	DELANGE	T Mathématiques (Orsay).
SCHWARTZ	T Calcul différentiel et intégral.	DENY	T Mathématiques (Orsay).
CHOUARD	T Physiologie végétale.	P. GERMAIN	T Mécanique théorique des fluides.
MALAVARD	T Aviation.	G. LUCAS	T Géologie.
BRELOT	T Calcul différentiel.		

Secrétaire général..... C. MONIER.

Ce travail a été effectué au laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure au cours des années 1956-1959. Il a été entrepris à la suite des recherches de J. E. BLAMONT, qui a, le premier, mis en évidence les effets que j'ai étudiés.

Je remercie MM. A. KASTLER et J. BROSSEL qui m'ont dirigé dans mes recherches pour la bienveillance qu'ils m'ont constamment témoignée et l'aide indispensable qu'ils n'ont cessé de m'apporter.

M^{me} M. A. BOUCHAT-GUIOCHON et M^{lle} F. BOUTRON ont fait une partie des expériences décrites ci-dessous ; je les en remercie très vivement ainsi que tous les chercheurs et techniciens du laboratoire, sans le concours de qui je n'aurais pu mener à bien ce travail. En particulier, je tiens à exprimer ma reconnaissance à mes camarades J. E. BLAMONT, J. M. WINTER et J. MARGERIE avec qui j'ai eu de longues et fructueuses discussions sur les problèmes théoriques que j'ai envisagés.

Enfin je remercie M. Y. ROCARD, Directeur du Laboratoire, de sa généreuse hospitalité, et la Direction du Centre National de la Recherche Scientifique de son aide financière.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41547114_0006

ÉTUDE DE LA DIFFUSION MULTIPLE COHÉRENTE DE LA LUMIÈRE DE RÉSONANCE OPTIQUE. APPLICATION AU NIVEAU 6^3P_1 DU MERCURE.

Sommaire. — On étudie les effets de la diffusion multiple de la lumière de résonance optique sur les résultats des mesures de durées de vie des niveaux atomiques excités. Dans une première partie, on développe un formalisme permettant de tenir compte des effets du champ de rayonnement sur les états excités des atomes. On retrouve par cette méthode les résultats classiques concernant le cas d'un seul atome (diffusion simple). En l'appliquant au cas de 2 atomes, on trouve que les équations d'évolution des amplitudes de probabilité des états excités sont couplées par des coefficients qui correspondent physiquement au passage de l'excitation d'un atome à un autre par l'intermédiaire d'un photon optique (diffusion multiple). On applique ces résultats au cas des $\mathcal{N}$ atomes d'une vapeur (problème de la diffusion multiple de la lumière de résonance optique). On résout les équations d'évolution des amplitudes de probabilité des états excités par approximations successives par rapport aux termes de couplage représentant la diffusion multiple. Des approximations d'ordre géométrique permettent de sommer les séries obtenues et d'exprimer les résultats en fonction d'un seul paramètre x ; x représente la probabilité pour qu'un photon émis par un des $\mathcal{N}$ atomes soit réabsorbé par un autre avant de sortir de la cellule à résonance. La durée de vie apparente du niveau excité (« durée de cohérence »), le taux de polarisation de la lumière de résonance, le temps d'emprisonnement du rayonnement sont exprimés en fonction de x pour les différents sous-niveaux hyperfins des isotopes du mercure. On discute enfin les diverses approximations faites dans le calcul.

Les résultats de la théorie ont été vérifiés expérimentalement dans le cas de la diffusion multiple des photons de la raie $2\ 537\text{ Å} (6^1S_0 - 6^3P_1)$ par les atomes de mercure. En particulier, le taux de polarisation de la lumière de résonance optique et la durée de vie apparente ou durée de cohérence du niveau 6^3P_1 ont été mesurés, dans le cas de l'excitation sélective d'un isotope pair ou de l'un des niveaux hyperfins des isotopes impairs, en fonction du nombre d'atomes par cm^3 diffusant le rayonnement, pour des conditions géométriques déterminées. L'influence des conditions géométriques a été également étudiée, ainsi que la largeur et la forme des raies de résonance magnétique dans le cas de la diffusion double. Les résultats expérimentaux sont en général en bon accord avec les prévisions théoriques.

I. ÉTUDE THÉORIQUE.

(1^{re} partie)

Introduction. — La méthode de la double résonance, due à Kastler et Brossel [1], destinée à l'étude des niveaux atomiques excités, a été appliquée pour la première fois par Brossel [2] dans le cas du niveau de résonance 6^3P_1 des divers isotopes du mercure. Elle permet en principe de déterminer la structure de ce niveau et sa durée de vie τ . Les résultats de Brossel concernant la durée de vie ont été remis en question à la suite des travaux de Blamont [3]. L'expérience montre que la largeur $\Delta\omega_0$ des raies de résonance magnétique, aux très faibles niveaux de radiofréquence, n'est pas liée à τ par la relation prévue $\Delta\omega_0 = 2/\tau$, mais est en réalité une fonction des conditions expérimentales. En particulier, les raies s'affinent lorsque la densité de vapeur du mercure soumis à la double résonance augmente. Cet effet a pu être attribué avec certitude à la diffusion multiple cohérente des photons de résonance optique de la raie $6^1S_0 - 6^3P_1$ ($2\ 537\text{ Å}$) par les atomes de mercure de la vapeur [4]. La dépolarisation de la lumière de résonance optique, l'augmentation du temps d'emprisonnement du rayonnement, observées lorsque la densité de vapeur croît, ont la même origine. Les résultats expérimentaux, concernant ce phénomène, sont déjà partiellement publiés [4], [5], [6]. Son étude théorique impose de reprendre à la base la théorie de l'absorption et de l'émission des photons par un système atomique et le problème même de la résonance magnétique dans l'état excité d'un atome. En effet les raisonnements habituellement

faits ne font pas intervenir les effets de cohérence, dont nous avons essayé de rendre compte par la théorie développée ci-dessous.

Les calculs que nous avons faits s'appliquent essentiellement au cas du mercure, c'est-à-dire d'une transition optique entre un niveau fondamental pour lequel $J = 0$ et un niveau excité de résonance pour lequel $J = 1$; on suppose en outre que le noyau de l'atome a un spin nucléaire I et que la structure hyperfine est grande devant la largeur Doppler de la raie, si bien que la diffusion multiple se produit indépendamment pour chacune de ses composantes hyperfines. Les résultats obtenus sont également valables pour toute transition optique reliant 2 niveaux de moments angulaires quelconques (qui correspondent aux moments angulaires I et F de notre calcul) pourvu que la raie correspondante soit bien isolée dans le spectre. D'autre part, nous avons dû, pour conduire le calcul jusqu'au bout, faire un certain nombre d'hypothèses restrictives, satisfaites dans les conditions de la plupart de nos expériences, que nous discuterons à la fin de cet exposé.

Dans une première partie, nous indiquerons la méthode utilisée pour tenir compte en détail des effets du champ de rayonnement sur les états excités des atomes. Nous appliquerons cette méthode d'abord au cas de la diffusion simple, ce qui nous permettra de retrouver les résultats classiques de Brossel [2] et nous étudierons ensuite le cas de 2 atomes. Dans une deuxième partie,

nous généraliserons au cas de l'ensemble des $\mathcal{N}$ atomes d'une vapeur et nous appliquerons nos résultats aux divers cas concrets rencontrés dans nos expériences (calcul explicite des taux de polarisation, durées de cohérence, etc...). Une troisième partie résumera l'ensemble des résultats expérimentaux en les comparant aux prévisions théoriques.

1. Méthode de traitement du champ de rayonnement. — Le vecteur d'état Ψ du système constitué par les $\mathcal{N}$ atomes identiques d'une vapeur et le champ de rayonnement peut être décomposé en superposition linéaire d'états orthonormés $|f, \alpha >$ et $|e, \beta >$:

$$\Psi(t) = \sum_{\alpha} a_{f\alpha}(t) |f, \alpha > + \sum_{\beta} a_{e\beta}(t) |e, \beta >. \quad (I,1)$$

Dans les états $|f, \alpha >$, d'énergie E_{α} , les atomes sont tous dans un sous-niveau Zeeman de l'état fondamental, en présence d'un photon, caractérisé par son vecteur d'onde et une direction de polarisation et dont l'énergie est voisine de celle correspondant à l'excitation du niveau de résonance de l'un des atomes. Dans les états $|e, \beta >$, d'énergie E_{β} , l'un des atomes est porté dans un sous-niveau Zeeman de son niveau de résonance, aucun photon n'étant présent. Les lettres α ou β indiquent l'ensemble des nombres quantiques et paramètres qui spécifient chaque état.

Nous négligeons ainsi tous les états dans lesquels plusieurs atomes sont excités en même temps, ceux où plusieurs photons sont présents et ceux où des atomes sont excités dans d'autres niveaux que le niveau de résonance. Ces approximations sont classiques dans l'étude de la résonance optique [6, 7, 8]. La dernière revient à supposer que chaque atome n'a que 2 niveaux, ayant chacun une structure Zeeman.

L'Hamiltonien du système a la forme (en l'absence d'une perturbation par la radiofréquence) : $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I$ (I,2) formule dans laquelle :

— $\mathcal{H}_0$ est un Hamiltonien diagonal. Ses éléments de matrice entre les états $|f, \alpha >$ ou $|e, \beta >$ sont les énergies E_{α} et E_{β} de ces états :

$$\begin{cases} \langle f, \alpha | \mathcal{H}_0 | f, \alpha \rangle = E_{\alpha} \\ \langle e, \beta | \mathcal{H}_0 | e, \beta \rangle = E_{\beta}. \end{cases} \quad (I,3)$$

— $\mathcal{H}_I$ est une partie non diagonale de l'Hamiltonien et n'a d'éléments de matrice non nuls qu'entre des états du type $|f, \alpha >$ et des états du type $|e, \beta >$. $\mathcal{H}_I$ est la partie du champ de rayonnement responsable des transitions dipolaires électriques entre l'état excité et l'état fondamental des atomes, avec absorption ou émission d'un photon. Ses éléments de matrice peuvent éventuellement dépendre du temps (cf. paragraphe 2).

En présence d'un champ magnétique de radiofréquence, l'Hamiltonien contient un terme supplé-

mentaire $\mathcal{H}_{RF}$, dont les éléments de matrice relient entre eux les états $|e, \beta >$ correspondant à l'excitation du même atome et ont une dépendance du temps en $e^{\pm i\omega t}$; nous négligeons ainsi l'action de la radiofréquence sur l'état fondamental, ce qui est légitime si les fréquences de résonance sont très différentes dans l'état fondamental et dans l'état excité pour un même champ magnétique statique (cas du mercure). Un changement de variables convenable nous permettra de nous ramener au même problème mathématique qu'en l'absence de radiofréquence. Remarquons que nous traitons de manière semi-classique la partie $\mathcal{H}_{RF}$ du champ de rayonnement responsable des transitions dipolaires magnétiques entre sous-niveaux Zeeman, c'est-à-dire que les éléments de matrice correspondant à l'absorption et à l'émission d'un photon de radiofréquence seront considérés comme égaux ; ce traitement est justifié par la valeur négligeable des probabilités d'émission spontanée pour ces transitions, comparées aux probabilités des transitions induites (en d'autres termes, le nombre de photons de fréquence hertzienne par cm^3 est toujours très grand).

La dépendance du temps de $\Psi(t)$, c'est-à-dire des coefficients $a_{f\alpha}(t)$ et $a_{e\beta}(t)$ de son développement (I,1) sera déterminée par l'équation de Schrödinger ⁽¹⁾

$$\frac{d\Psi}{dt}(t) = [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I(t)] \Psi(t). \quad (I,4)$$

Nous passerons alors en représentation d'interaction, posant

$$\begin{cases} \Phi(t) = e^{i\mathcal{H}_0 t} \Psi(t) = \sum_{\alpha} b_{f\alpha}(t) |f, \alpha > + \sum_{\beta} b_{e\beta}(t) |e, \beta > \end{cases} \quad (I,5)$$

$$\begin{cases} \mathcal{H}'_I(t) = e^{i\mathcal{H}_0 t} \mathcal{H}_I(t) e^{-i\mathcal{H}_0 t} \end{cases} \quad (I,6)$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} b_{f\alpha}(t) = a_{f\alpha}(t) e^{iE_{\alpha} t} \\ b_{e\beta}(t) = a_{e\beta}(t) e^{iE_{\beta} t} \end{cases} \quad (I,7)$$

$\Phi(t)$ satisfait à l'équation

$$\frac{d\Phi(t)}{dt} = \mathcal{H}'_I(t) \Phi(t). \quad (I,8)$$

La résolution de (I,8) s'effectue de façon approchée suivant une méthode classique en Électrodynamique Quantique [7, 8, 9] consistant à éliminer les coefficients $b_{f\alpha}(t)$. On intègre (I,8) de 0 à t :

$$\Phi(t) = \Phi(0) - i \int_0^t \mathcal{H}'_I(t') \Phi(t') dt'. \quad (I,9)$$

Le 2^e membre de (I,9) est alors substitué à $\Phi(t)$ au 2^e membre de (I,8) :

$$\frac{d\Phi(t)}{dt} = \mathcal{H}'_I(t) \Phi(0) - i \int_0^t \mathcal{H}'_I(t') \mathcal{H}'_I(t'') \Phi(t'') dt'. \quad (I,10)$$

⁽¹⁾ Dans tout ce qui suit, on a utilisé un système d'unités dans lequel $\hbar = c = 1$.

En portant le développement (I,5) et en multipliant par $\langle e, \beta |$, on obtient

$$\frac{id}{dt} b_{e\beta}(t) = \langle e, \beta | \mathcal{H}'_I(t) | \Phi(0) \rangle - i \sum_{e\beta'} \int_0^t \langle e, \beta | \mathcal{H}'_I(t) \mathcal{H}'_I(t') | e, \beta' \rangle b_{e\beta'}(t') dt' \quad (I,11)$$

(en tenant compte du fait que les éléments de matrice tels que $\langle e, \beta | \mathcal{H}'_I(t) \mathcal{H}'_I(t') | f, \alpha \rangle$ sont nuls d'après les hypothèses faites sur $\mathcal{H}'_I(t)$).

En général $\Phi(0)$ sera un état excité $|e, \beta_0\rangle$ et le 1^{er} terme du 2^e membre de (I,11) sera nul. Cette condition initiale n'a pas de réalité physique. Elle signifie que la perturbation due au champ de rayonnement commence à agir seulement à partir d'un instant initial déterminé. Mais on peut montrer [7, 8, 9] que les effets dus à l'établissement de la perturbation s'amortissent en un temps court, de l'ordre de l'inverse de la fréquence correspondant à la transition optique envisagée (c'est-à-dire 10^{-15} sec environ) alors que les effets qui nous intéressent correspondent à la durée de vie d'un niveau excité (de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-7} sec). En tout état de cause, il est possible même de s'affranchir de cette restriction et de prendre comme état initial celui dans lequel un paquet d'onde correspondant à 1 photon excite les atomes de la vapeur (6, appendice n° 1). Quel que soit l'état initial, les équations (I,11) ne font plus intervenir que les amplitudes de probabilité $b_{e\beta}$ des états excités. Nous aurons à évaluer les intégrales du second membre, ce que nous pourrons faire en supposant que la solution est une somme d'exponentielles e^{ct} , avec $|\rho| \ll E_\beta, E_\alpha$; nous vérifierons ensuite que la solution obtenue satisfait bien à cette condition. Connaissant les $b_{e\beta}(t)$, l'équation (I,8) nous donnera, par multiplication par $\langle f, \alpha |$:

$$\frac{id}{dt} b_{f\alpha} = \sum_{\beta} \langle f, \alpha | \mathcal{H}'_I(t) | e, \beta \rangle b_{e\beta}(t). \quad (I,12)$$

Nous obtiendrons ainsi toutes les valeurs cherchées $|a_{f\alpha}(t)|^2$ et nous pourrons étudier le rayonnement émis.

2. Cas de l'émission de rayonnement par un atome isolé. — Les résultats de cette étude sont bien connus; nous allons brièvement reprendre le calcul par la méthode exposée au paragraphe 1, en supposant que l'atome est animé d'un mouvement rectiligne uniforme de vitesse $\mathbf{v}$, et se trouve éventuellement en présence d'un champ de radio-fréquence.

A) NOTATIONS ET CONVENTIONS. — Nous supposons, comme nous l'avons dit plus haut que dans l'état fondamental le moment cinétique électronique vaut $J = 0$ et que le spin nucléaire est I ; l'énergie de l'état fondamental est prise comme zéro en l'absence de champ magnétique; le sous-

niveau Zeeman $|\mu\rangle$, de nombre quantique magnétique μ , a l'énergie $\mu\omega$, dans un champ magnétique $\mathbf{H}_0$. Nous ne considérons que la transition vers un niveau hyperfin de moment cinétique total F de l'état excité. L'énergie de ce niveau sera désignée par k_0 en l'absence de champ magnétique et l'énergie Zeeman du sous-niveau $|m\rangle$ de nombre quantique magnétique m , sera $m\omega_0$ dans le champ $\mathbf{H}_0$.

Lorsque l'atome est dans un état $|\mu\rangle$, nous supposons qu'un photon, caractérisé par un vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et une direction de polarisation repérée par l'indice λ ($\lambda = 1$ ou 2), est présent. Les états sont ainsi désignés par $|\mu, \mathbf{k}, \lambda\rangle$ et constituent un ensemble continu; l'énergie de chacun est $k + \mu\omega$. Le champ de rayonnement est quantifié en ondes planes: dans un trièdre de référence Oxyz ($Oz // \mathbf{H}_0$), les vecteurs électriques $\mathbf{e}_1$ et $\mathbf{e}_2$ des ondes planes repérées par les indices 1 et 2, et dont le vecteur d'onde $\mathbf{k}$ a des angles polaires θ et φ , sont dans le plan $(\mathbf{k}, Oz)$ et perpendiculaire à ce plan respectivement (fig. I,1).

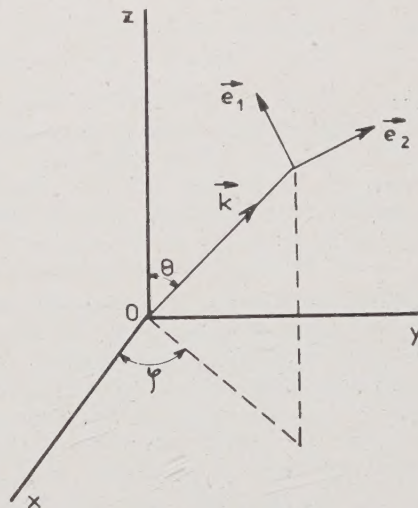


FIG. I,1.

Nous connaissons les éléments de matrice de $\mathcal{H}_0$ entre ces divers états puisque $\mathcal{H}_0$ représente leurs énergies; il nous reste à connaître ceux de $\mathcal{H}_I$. Pour un atome fixe, de dimensions négligeables devant la longueur d'onde optique du rayonnement, placé au point A tel que $\mathbf{OA} = \mathbf{R}$, on a (cf. réf. 9, p. 143 et 176).

$$\langle \mu, \mathbf{k}, \lambda | \mathcal{H}_I | m \rangle = A_k e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}} \langle \mu | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m \rangle. \quad (I,13)$$

A_k est une fonction de k , proportionnelle à $1/\sqrt{k}$, dont la valeur dépend des fonctions d'onde électroniques de l'atome.

$\mathbf{D}$ est un opérateur vectoriel hermitique sans dimensions, proportionnel au moment dipolaire électrique de l'atome; dans le cas particulier

où $I = 0$ (et par suite $F = J = 1$) ses éléments de matrice sont [10]

$$\begin{cases} \langle \mu = 0 | \mathbf{D} | m_J = \pm 1 \rangle_{I=0} = \mp \frac{\xi \pm i\eta}{\sqrt{2}} \\ \langle \mu = 0 | \mathbf{D} | m_J = 0 \rangle_{I=0} = \zeta \end{cases} \quad (\text{I,14})$$

(ξ, η, ζ étant les vecteurs unitaires des axes).

Pour un isotope de spin nucléaire I , les fonctions d'onde $|m\rangle$ du niveau hyperfin F sont :

$$|m\rangle = \sum_{m_J=-1}^{+1} C_{11}(F, m; m_J, m - m_J) \chi(m - m_J) |m_J\rangle_{I=0} \quad (\text{I,15})$$

où $|m_J\rangle_{I=0}$ est la fonction d'onde en l'absence de spin nucléaire,

— $\chi(m_J)$ est la fonction d'onde de spin nucléaire correspondant à la valeur propre m_I de l'opérateur I_z ,

— les $C_{11}(F, m; m_J, m_I)$ sont des coefficients de Clebsch-Gordan (notation de Blatt et Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics*, p. 790).

On en déduit en général

$$\begin{aligned} \langle \mu | \mathbf{D} | m \rangle &= C_{11}(F, m; m - \mu, \mu) \\ &\langle \mu = 0 | \mathbf{D} | m_J = m - \mu \rangle_{I=0}. \end{aligned} \quad (\text{I,16})$$

Lorsque l'atome est mobile avec une vitesse $\mathbf{v}$ constante, faible devant celle de la lumière, nous négligerons tous les effets relativistes et nous admettrons en particulier que les éléments de matrice de $\mathcal{H}_I$ sont toujours donnés par (I,13), mais $\mathbf{R}$ étant maintenant variable avec le temps : $\mathbf{R} = \mathbf{R}_0 + \mathbf{v}t$. Il s'agit d'une approximation de type adiabatique consistant à prendre pour $\mathcal{H}_I$ à l'instant t la valeur qu'il aurait si l'atome occupait en permanence la position qu'il occupe à l'instant t . Nous négligeons également le recul de l'atome lors de l'émission ou de l'absorption d'un photon ; l'impulsion de ce dernier est environ 5.10^4 fois plus petite que celle d'un atome dont l'énergie cinétique est l'énergie thermique à la température ambiante.

B) CAS D'UN ATOME ISOLÉ SANS CHAMP DE RADIO-FRÉQUENCE. — Nous avons vu au paragraphe 1 que la résolution du problème conduit à évaluer les intégrales du second membre de (I,11) ce que nous ferons en supposant que la solution $b_m(t)$ est une combinaison linéaire d'exponentielles $e^{\rho t}$ où $|\rho| \ll k_0$.

Tenant compte de (I,6) et (I,13) on trouve pour un tel terme exponentiel

$$\begin{aligned} \int_0^t \langle m | \mathcal{H}_I'(t) \mathcal{H}_I'(t') | m' \rangle e^{\rho t'} dt' \\ = \sum_{\mu, \lambda, \lambda'} |A_k|^2 \langle m | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu \rangle \langle \mu | \mathbf{e}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} | m' \rangle \\ e^{i[(m-m')\omega_0 + \rho]t} \int_0^t e^{i[k_0 + m'\omega_0 - k - \mu\omega_f + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} + i\rho](t-t')} dt'. \end{aligned} \quad (\text{I,17})$$

Or lorsque $t \gg 1/x_0$ on sait que [9] :

$$\int_0^t e^{i(x_0 - x)(t-t')} dt' = i \zeta(x_0 - x) \quad (\text{I,18})$$

où :

$$\zeta(x) = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{1}{x + i\varepsilon} = \mathcal{P} \frac{1}{x} - i\pi \delta(x). \quad (\text{I,19})$$

D'autre part, la sommation sur $\mathbf{k}$ doit être interprétée comme une intégration sur $\mathbf{k}$ [9] :

$$\sum_{\mathbf{k}} \rightarrow \int \rho(k) \sin \theta d\theta d\varphi dk \text{ avec } \rho(k) = k^2/(2\pi)^3. \quad (\text{I,20})$$

D'où :

$$\begin{aligned} \int_0^t \langle m | \mathcal{H}_I'(t) \mathcal{H}_I'(t') | m' \rangle e^{\rho t'} dt' \\ = i e^{i[(m-m')\omega_0 + \rho]t} \sum_{\lambda, \mu} \int \rho(k) \sin \theta d\theta d\varphi dk |A_k|^2 \\ \zeta(k_0 + m'\omega_0 - k - \mu\omega_f + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} + i\rho) \\ \langle m | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu \rangle \langle \mu | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m' \rangle. \end{aligned} \quad (\text{I,21})$$

La fonction ζ a sa singularité au voisinage de $k = k_0$, quantité très grande devant ω_0 , ω_f (effet Zeeman), $\mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$ (effet Doppler) et $|\rho|$ (par hypothèse). $\rho(k)$ et $|A_k|^2$ varient très peu si k a une variation de l'ordre de ces quantités. On peut donc les négliger dans l'argument de la fonction ζ . Les sommations sur λ et μ et l'intégration sur les angles conduisent alors à $8\pi/3 \delta_{mm'}$ (6, appendice n° 2) et il reste, en ajoutant tous les termes possibles en $e^{\rho t'}$ qui constituent $b_{m'}(t')$:

$$\begin{aligned} \int_0^t \langle m | \mathcal{H}_I'(t) \mathcal{H}_I'(t') | m' \rangle b_{m'}(t') dt' \\ = \delta_{mm'} b_{m'}(t) \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E \right) \end{aligned} \quad (\text{I,22})$$

où

$$\begin{cases} \frac{\Gamma}{2} = \frac{8\pi^2}{3} \rho(k_0) |A_{k_0}|^2 \\ \Delta E = \frac{8\pi}{3} \int_0^\infty \rho(k) |A_k|^2 \mathcal{P} \frac{1}{k_0 - k} dk. \end{cases} \quad (\text{I,23})$$

Γ n'est autre que la somme sur $\mathbf{k}, \lambda$ et μ des probabilités par unité de temps des transitions $|m\rangle \rightarrow |\mathbf{k}, \lambda, \mu\rangle$, obtenues en appliquant la théorie des perturbations dépendant du temps.

ΔE est une intégrale divergente, qui représente la self-énergie de l'état excité de l'atome en présence du champ de rayonnement. Après élimination de la partie divergente, ΔE est une petite correction à l'énergie k_0 .

On posera par la suite

$$\tilde{k}_0 = k_0 + \Delta E. \quad (\text{I,24})$$

On a donc, d'après (I,11) et (I,22), en supposant que l'état initial est un état excité, comme il a été expliqué au paragraphe 1 :

$$\frac{d}{dt} b_m(t) = - \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E \right) b_m(t) \quad (\text{I,25})$$

et

$$b_m(t) = b_m(0) e^{-\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right)t} \quad (I,26)$$

Le résultat est bien une exponentielle $e^{\alpha t}$, telle que $|\rho| \ll k_0$, ce qui justifie le calcul fait plus haut. L'interprétation physique de ce résultat est évidente : la probabilité $|b_m(t)|^2 = |b_m(0)|^2 e^{-\Gamma t}$ de trouver l'atome dans l'état excité $|m\rangle$ décroît exponentiellement avec une constante de temps $\tau = 1/\Gamma$, durée de vie de l'état excité, la même pour tous les sous-niveaux Zeeman. De même, tous les sous-niveaux Zeeman ont la même self-énergie ΔE . Ces résultats sont les mêmes, quelle que soit la vitesse de l'atome, ce qui est *a priori* évident avec nos hypothèses non relativistes. Enfin, si l'atome est à l'instant initial dans un état $|m_0\rangle$ déterminé, $b_m(0) = \delta_{mm_0}$ et $|b_m(t)|^2 = \delta_{mm_0} e^{-\Gamma t}$, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de transitions vers les autres sous-niveaux Zeeman, résultat également évident.

On peut alors utiliser l'équation (I,12) pour calculer $b_{\mu,\mathbf{k},\lambda}(t)$. On obtient en particulier dans le cas où $b_m(0) = \delta_{mm_0}$:

$$|b_{\mu,\mathbf{k},\lambda}(t = \infty)|^2 = |A_k|^2 \frac{|\langle \mu | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m_0 \rangle|^2}{(k + \mu\omega_f - \tilde{k}_0 - m_0\omega_0 - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}.$$

On retrouve ainsi le résultat classique selon lequel la raie optique émise est une forme de Lorentz, déplacée par effet Doppler (terme $\mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$ du dénominateur), de largeur à mi-hauteur Γ (largeur naturelle du niveau excité).

C) CAS D'UN ATOME ISOLÉ EN PRÉSENCE D'UN CHAMP DE RADIOFRÉQUENCE. — Nous supposons qu'il s'agit d'un champ magnétique $\mathbf{H}_1$ tournant à la vitesse angulaire ω dans le plan xOy. Avec les conventions indiquées au paragraphe 1 (ne tenir compte que des transitions possibles entre les sous-niveaux $|m\rangle$), l'Hamiltonien contient un terme supplémentaire $\mathcal{H}_{\text{RF}}$.

$$\mathcal{H}_{\text{RF}} = \frac{\gamma H_1}{2} [e^{-i\omega t} F_+ + e^{+i\omega t} F_-] \quad (I,27)$$

où l'on a posé : $F_\pm = F_x \pm iF_y$ ($\mathbf{F}$ = moment cinétique du niveau excité, γ = son rapport gyro-magnétique). On a donc :

$$\langle m' | \mathcal{H}_{\text{RF}} | m \rangle = K_{m'm} [\delta_{m',m+1} e^{-i\omega t} + \delta_{m',m-1} e^{i\omega t}]. \quad (I,28)$$

L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i \frac{d}{dt} \Psi(t) = [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I(t) + \mathcal{H}_{\text{RF}}(t)] \Psi(t),$$

Soit en utilisant le développement

$$\Psi = \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} a_{\mu,\mathbf{k},\lambda}(t) |\mu, \mathbf{k}, \lambda\rangle + \sum_m a_m(t) |m\rangle :$$

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} a_m = (k_0 + m\omega_0) a_m \\ \quad + \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \langle m | \mathcal{H}_I(t) | \mu, \mathbf{k}, \lambda \rangle a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \quad + \sum_{m' = m \pm 1} K_{mm'} e^{-i(m-m')\omega t} a_{m'} \\ \frac{d}{dt} a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} = (k + \mu\omega_f) a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \quad + \sum_m \langle \mu, \mathbf{k}, \lambda | \mathcal{H}_I(t) | m \rangle a_m. \end{cases} \quad (I,29)$$

Pour se ramener au problème précédent, il faut éliminer le couplage entre les divers coefficients a_m . Pour cela, on effectue le changement de variables qui correspond au passage dans un référentiel tournant à la vitesse angulaire ω [11] :

$$a_m = a'_m e^{-im\omega t}$$

(I,29) devient :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} a'_m = [k_0 + m(\omega_0 - \omega)] a'_m + \sum_{\mu,\mathbf{k},\lambda} e^{im\omega t} \langle m | \mathcal{H}_I(t) | \mu, \mathbf{k}, \lambda \rangle a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} + \sum_{m' = m \pm 1} K_{mm'} a'_{m'} \\ \frac{d}{dt} a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} = (k + \mu\omega_f) a_{\mu,\mathbf{k},\lambda} \\ \quad + \sum_m \langle \mu, \mathbf{k}, \lambda | \mathcal{H}_I(t) | m \rangle e^{-im\omega t} a'_m. \end{cases} \quad (I,30)$$

La matrice à $2F + 1$ lignes et $2F + 1$ colonnes

$$\mathcal{H} = (\omega_0 - \omega) F_z + \gamma H_1 F_x \quad (I,31)$$

(dont les éléments de matrices non diagonaux entre $|m\rangle$ et $|m'\rangle$ sont précisément les $K_{mm'}$) peut être diagonalisée au moyen d'une transformation unitaire (qui correspond à la quantification sur l'axe du champ effectif dans le référentiel tournant). On appellera $|M\rangle$ ses états propres, correspondant à la valeur propre M de la projection de $\mathbf{F}$ sur l'axe du champ effectif, et à la valeur propre $M\varepsilon$ de la matrice

$$(\varepsilon = \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma H_1)^2}).$$

$\langle m | M \rangle$ sera l'élément de matrice de la transformation unitaire. On pose donc

$$\begin{cases} |m\rangle = \sum_M \langle M | m \rangle |M\rangle \\ |M\rangle = \sum_m \langle m | M \rangle |m\rangle \\ a'_M = \sum_m \langle M | m \rangle a'_m \\ a_m = \sum_M \langle m | M \rangle a'_M \end{cases} \quad (I,32)$$

$$\text{avec } \begin{cases} \sum_M \langle M | m \rangle \langle m | M' \rangle = \delta_{MM'} \\ \sum_M \langle m | M \rangle \langle M | m' \rangle = \delta_{mm'}. \end{cases}$$

On est ainsi conduit au système

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{d}{dt} a_M^* &= (k_0 + M\varepsilon) a_M^* \\ &+ \sum_{\substack{m \\ \mu, k, \lambda}} \langle M|m \rangle e^{im\omega t} \langle m | \mathcal{H}_I(t) | \mu, k, \lambda \rangle a_{\mu, k, \lambda} \\ \frac{d}{dt} a_{\mu, k, \lambda} &= (k + \mu\omega_f) a_{\mu, k, \lambda} \\ &+ \sum_{mM} \langle \mu, k, \lambda | \mathcal{H}_I(t) | m \rangle e^{-im\omega t} \langle m | M \rangle a_M^* \end{aligned} \right. \quad (I,33)$$

Ainsi on se trouve ramené à un problème dans lequel les états excités ne sont pas couplés directement entre eux. On passe dans la représentation d'interaction correspondant à ce problème (cf. paragraphe 1).

$$\left\{ \begin{aligned} b_M &= e^{i(k_0 + M\varepsilon)t} a_M^* \\ b_{\mu, k, \lambda} &= e^{i(k + \mu\omega_f)t} a_{\mu, k, \lambda} \end{aligned} \right. \quad (I,34)$$

L'opérateur $\mathcal{H}_I^T(t)$ d'éléments de matrice

$$\begin{aligned} \langle \mu, k, \lambda | \mathcal{H}_I^T(t) | M \rangle \\ = \sum_m \langle \mu, k, \lambda | \mathcal{H}_I(t) | m \rangle e^{-im\omega t} \langle m | M \rangle \end{aligned} \quad (I,35)$$

joue maintenant le rôle de $\mathcal{H}_I(t)$ dans le calcul précédent.

On aura à calculer des intégrales du type (I,17) ; ε et ω étant, comme ω_0 , négligeables devant k_0 , on trouve :

$$\begin{aligned} \int_0^t \sum_{\mu, k, \lambda} \langle M | \mathcal{H}_I^T(t) | \mu, k, \lambda \rangle \\ \langle \mu, k, \lambda | \mathcal{H}_I^T(t') | M' \rangle b_{M'}(t') dt' \\ = \sum_{mm'} \langle M|m \rangle e^{i(m-m')\omega t} \\ \langle m'|M' \rangle \delta_{mm'} \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E \right) b_{M'}(t) \\ = \delta_{MM'} \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E \right) b_M(t). \end{aligned} \quad (I,36)$$

D'où la solution :

$$\begin{aligned} a_M^* &= e^{-i(\tilde{k}_0 + M\varepsilon - i\frac{\Gamma}{2})t} a_M^*(0) \\ &= e^{-i(\tilde{k}_0 - \frac{\Gamma}{2})t} \sum_m \langle M|m \rangle e^{-iM\varepsilon t} a_{m'}^*(0) \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} a_{m'}^*(t) &= e^{-i(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2})t} \sum_{Mm'} \langle m|M \rangle e^{-iM\varepsilon t} \langle M|m' \rangle a_{m'}^*(0) \\ &= e^{-i(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2})t} \sum_{m'} \langle m | e^{-i\mathcal{H}_I t} | m' \rangle a_{m'}^*(0). \end{aligned}$$

Ainsi les $a_{m'}^*(t)$ sont les éléments d'un vecteur A à $2F + 1$ éléments, dont l'évolution dans le temps satisfait à

$$\frac{d}{dt} A = \left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \mathcal{H} \right) A. \quad (I,37)$$

Tout se passe donc pour l'évolution dans le temps

des a_m^* comme si $\mathcal{H}_I(t)$ n'existait pas mais k_0 étant remplacé par $\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2}$, dont le terme imaginaire provoque une décroissance exponentielle des probabilités $|a_m^*(t)|^2 = |a_m(t)|^2$. Les valeurs de

$$| \langle m | e^{-i\mathcal{H}t} | m' \rangle |^2$$

ne sont autres que les $P(F, m', m; t)$ définis par Brossel [2].

Par suite, la probabilité de trouver un atome dans l'état m' à l'instant t , sachant qu'il était dans l'état m à l'instant 0, est $e^{-\Gamma t} P(F, m, m'; t)$; ceci justifie le résultat obtenu par Brossel pour la détermination des populations des niveaux lorsque l'on a affaire à une assemblée d'atomes suffisamment éloignés les uns des autres pour que les effets de la diffusion multiple soient négligeables.

3. Cas d'un système de 2 atomes. — A) NOTATIONS. — Les 2 atomes de vitesse $\mathbf{v}_1$ et $\mathbf{v}_2$ sont situés aux distances $\mathbf{R}_1$ et $\mathbf{R}_2$ de l'origine à l'instant $t = 0$. Les états du système seront désignés par :

$$\begin{aligned} - |1\mu_1, 2m_2 \rangle & \left\{ \begin{aligned} & \text{— Atome 1 dans le sous-niveau} \\ & \text{Zeeman } \mu_1 \text{ de l'état fonda-} \\ & \text{mental.} \\ & \text{— Atome 2 dans le sous-niveau} \\ & \text{Zeeman } m_2 \text{ de l'état excité.} \end{aligned} \right. \\ - |1m_1, 2\mu_2 \rangle & \left\{ \begin{aligned} & \text{— Atome 1 dans le sous-niveau} \\ & \text{Zeeman } m_1 \text{ de l'état excité.} \\ & \text{— Atome 2 dans le sous-niveau} \\ & \text{Zeeman } \mu_2 \text{ de l'état fonda-} \\ & \text{mental.} \end{aligned} \right. \\ - |1\mu_1, 2\mu_2, k, \lambda \rangle & \left\{ \begin{aligned} & \text{— Atomes 1 et 2 dans les sous-} \\ & \text{niveaux Zeeman } \mu_1 \text{ et } \mu_2 \text{ de} \\ & \text{l'état fondamental.} \\ & \text{— Présence d'un photon de vec-} \\ & \text{teur d'onde } k \text{ caractérisé par} \\ & \text{la polarisation } \lambda. \end{aligned} \right. \end{aligned}$$

Les énergies de ces 3 types d'états sont respectivement $\mu_1 \omega_f + k_0 + m_2 \omega_0$, $k_0 + m_1 \omega_0 + \mu_2 \omega_f$, $\mu_1 \omega_f + \mu_2 \omega_f + k$.

B) CALCUL DES INTÉGRALES (I,11). — Nous supposons toujours pour les évaluer que les $b(t)$ sont des combinaisons linéaires d'exponentielles e^{ct} , où $|\rho| \ll k_0$, en vérifiant *a posteriori* l'exactitude de cette hypothèse.

Les intégrales étudiées sont de deux types. Pour le 1^{er} type, les deux états excités qui interviennent correspondent à l'excitation du même atome. Elles valent évidemment :

$$\begin{aligned} \left\{ \begin{aligned} \int_0^t \langle 1\mu_1, 2m_2 | \mathcal{H}_I^T(t) \mathcal{H}_I^T(t') | 1\mu_1', 2m_2' \rangle b_{1\mu_1', 2m_2'}(t') dt' \\ = \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E \right) \delta_{\mu_1\mu_1'} \delta_{m_2m_2'} b_{1\mu_1, 2m_2}(t) \\ \int_0^t \langle 1m_1, 2\mu_2 | \mathcal{H}_I^T(t) \mathcal{H}_I^T(t') | 1m_1', 2\mu_2' \rangle b_{1m_1', 2\mu_2'}(t') dt' \\ = \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E \right) \delta_{\mu_2\mu_2'} \delta_{m_1m_1'} b_{1m_1, 2\mu_2}(t). \end{aligned} \right. \quad (I,38) \end{aligned}$$

La 2^e catégorie d'intégrales comporte celles du type

$$\begin{aligned} \int_0^t < 1\mu_1, 2m_2 | \partial \mathcal{C}'_1(t) \partial \mathcal{C}'_1(t') | 1m_1, 2\mu_2 > e^{\rho t'} dt' \\ = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \int_0^t dt' |A_{\mathbf{k}}|^2 e^{i\mathbf{k} \cdot [\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1 + \mathbf{v}_2 t - \mathbf{v}_1 t']} \\ < m_2 | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu_2 > < \mu_1 | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m_1 > \\ e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t} e^{i[k_0 + m_1\omega_0 - k - \mu_1\omega_f](t-t')} e^{\rho t'} dt'. \end{aligned}$$

Nous commencerons par effectuer l'intégration sur les angles polaires de $\mathbf{k}$ et la sommation sur λ , en posant

$$\begin{aligned} \left\{ \begin{aligned} \Delta \mathbf{R} &= (\mathbf{R}_2 + \mathbf{v}_2 t) - (\mathbf{R}_1 + \mathbf{v}_1 t') \\ \sum_{\lambda} < m_2 | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu_2 > < \mu_1 | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m_1 > \\ &= f(\theta, \varphi) = g(\theta', \varphi'; \Theta, \Phi) \end{aligned} \right. \end{aligned}$$

θ' et φ' sont les angles polaires de $\mathbf{k}$ dans un système d'axes $Ox'y'z'$ dont l'axe Oz' est porté par $\Delta \mathbf{R}$ (d'angles polaires Θ et Φ dans l'ancien système $Oxyz$). On trouve

$$\begin{aligned} \int \sin \theta' d\theta' d\varphi' e^{ik\Delta R \cos \theta'} g(\theta', \varphi'; \Theta, \Phi) \\ = \frac{1}{ik \Delta R} \int d\varphi' [e^{ik\Delta R} g(\theta' = 0, \varphi'; \Theta, \Phi) \\ - e^{-ik\Delta R} g(\theta' = \pi, \varphi'; \Theta, \Phi)] + \text{termes en } \frac{1}{(k \Delta R)^2}. \end{aligned}$$

Nous ne garderons que le 1^{er} terme, moyennant l'hypothèse que $k_0 \Delta R \ll 1$ (I,39), c'est-à-dire que la distance des atomes est supposée grande devant la longueur d'onde du rayonnement optique (notons en effet que les seules valeurs de k importantes sont voisines de k_0). Il est clair d'autre part que $g(\theta' = 0$ ou $\pi, \varphi'; \Theta, \Phi)$ ne doit plus dépendre de φ' et se réduit à $f(\Theta, \Phi)$ ou $f(\pi - \Theta, \pi + \Phi)$; ces deux valeurs sont d'ailleurs égales, car $f(\theta, \varphi)$ ne dépend que de la direction de $\mathbf{k}$ et non de son sens. L'intégrale cherchée vaut donc avec ces approximations :

$$\begin{aligned} - 2\pi i e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f - i\rho]t} \\ \int_0^\infty \rho(k) dk |A_{\mathbf{k}}|^2 \int_0^t dt' f(\Theta, \Phi) \times \\ \frac{e^{ik\Delta R} - e^{-ik\Delta R}}{k \Delta R} e^{i[k_0 + m_1\omega_0 - k - \mu_1\omega_f + i\rho](t-t')}. \end{aligned}$$

$\frac{\rho(k) |A_{\mathbf{k}}|^2}{k \Delta R}$ est une fonction de k beaucoup plus lentement variable que les exponentielles, contenant k . Pour une variable u quelconque, lorsque $k'u \gg 1$, nous écrivons

$$\begin{aligned} \int_0^\infty \rho(k) |A_{\mathbf{k}}|^2 e^{i(k' - k)u} \frac{e^{ik\Delta R} - e^{-ik\Delta R}}{k \Delta R} dk \\ \sim \frac{\rho(k') |A_{\mathbf{k}'}|^2}{k' \Delta R} \left\{ e^{ik'\Delta R} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(k' - k)(u - \Delta R)} dk - e^{-ik'\Delta R} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(k' - k)(u + \Delta R)} dk \right\} \\ \sim \frac{2\pi \rho(k') |A_{\mathbf{k}'}|^2}{k' \Delta R} \left\{ e^{ik'\Delta R} \delta(u - \Delta R) - e^{-ik'\Delta R} \delta(u + \Delta R) \right\}. \end{aligned}$$

L'intégrale sur t qui reste à effectuer comporte donc deux fonctions $\delta(t - t' \pm \Delta R)$. Nous supposons les atomes assez proches pour que, aux valeurs de t intéressantes ($t \sim 1/\Gamma$), $\Delta R \ll t$ (I,40) (c'est-à-dire que le temps de parcours de la lumière, de vitesse $c = 1$, d'un atome à l'autre est petit devant $\tau = 1/\Gamma$).

Posons $\mathbf{R}_{12} = \mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1$, $\mathbf{v}_{12} = \mathbf{v}_2 - \mathbf{v}_1$

$$a_{12} = k_0 \frac{\mathbf{v}_{12} \cdot \mathbf{R}_{12}}{R_{12}} \quad (\text{I,41})$$

(produit par k_0 de la projection de $\mathbf{v}_{12}$ sur $\mathbf{R}_{12}$).

Nous supposons aussi que

$$|\mathbf{v}_{12} t| \ll |\mathbf{R}_{12}| \quad (\text{I,42})$$

c'est-à-dire que ΔR varie peu pendant le temps t . On peut alors négliger la variation de ΔR , Θ et Φ avec le temps sauf dans les termes du type $k_0 \Delta R$ des exponentielles ($k_0 \Delta R$ étant très supérieur à 1 d'après (I,39), la condition (I,40) n'implique pas que $|a_{12} t|$ soit très inférieur à 1). Tenant compte de (I,23), il vient finalement :

$$\begin{aligned} - \frac{3}{4} \frac{i\Gamma e^{i(k_0 + m_1\omega_0 - \mu_1\omega_f)R_{12}}}{(k_0 + m_1\omega_0 - \mu_1\omega_f + i\rho) R_{12}} \\ \left[\sum_{\lambda} < m_2 | \mathbf{u}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu_2 > < \mu_1 | \mathbf{u}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m_1 > \right] \\ \times e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t} e^{\rho(t - R_{12})} e^{ia_{12}} \end{aligned}$$

formule dans laquelle $\mathbf{u}_\lambda$ est la position que prend $\mathbf{e}_\lambda$ lorsque $\mathbf{k}$ a la direction et le sens de $\mathbf{R}_{12}$, et dans laquelle on a utilisé le développement :

$$\Delta R = R_{12} + \frac{a_{12} t}{k_0} + \dots$$

Supposant enfin $\omega_0 R_{12}$, $\omega_f R_{12}$, $|\rho R_{12}| \ll 1$ (distance entre atomes très petite devant les longueurs d'onde associées aux effets Zeeman et à la variation dans le temps des amplitudes b), on obtient :

$$\begin{aligned} \int_0^t < 1\mu_1, 2m_2 | \partial \mathcal{C}'_1(t) \partial \mathcal{C}'_1(t') | 1m_1, 2\mu_2 > b_{1\mu_1, 2\mu_2}(t') dt' \\ = -\Gamma(1\mu_1, 2m_2; 1m_1, 2\mu_2; t) e^{ia_{12}t} b_{1\mu_1, 2\mu_2}(t) \quad (\text{I,43}) \end{aligned}$$

en posant

$$\begin{aligned} \Gamma(1\mu_1, 2m_2; 1m_1, 2\mu_2; t) \\ = \frac{3}{4} i\Gamma \frac{e^{ik_0 R_{12}}}{k_0 R_{12}} e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega_f]t} \\ \times \sum_{\lambda} < m_2 | \mathbf{u}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu_2 > < \mu_1 | \mathbf{u}_\lambda \cdot \mathbf{D} | m_1 >. \quad (\text{I,44}) \end{aligned}$$

Il en résulte que les équations d'évolution des coefficients b sont couplées entre elles ; ainsi, d'après (I,41) et (I,43)

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} b_{1\mu_1, 2m_2} = -\left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta E\right) b_{1\mu_1, 2m_2} \\ + \sum_{m_1\mu_1} \Gamma(1\mu_1, 2m_2; 1m_1, 2\mu_2; t) e^{ia_{12}t} b_{1m_1, 2\mu_2}. \quad (\text{I,45}) \end{aligned}$$

Le terme de couplage décroît avec R_{12} comme $\frac{1}{k_0 R_{12}}$, ce qui conduit à une probabilité de passage du photon d'un atome à un autre en $\frac{1}{(k_0 R_{12})^2}$; ceci était prévisible : l'énergie émise par un atome se répartit sur une sphère et l'autre atome a une section efficace pour son photon de résonance dont le diamètre est de l'ordre de la longueur d'onde du rayonnement $\Lambda = 2\pi/k_0$. Le facteur Γ a d'ailleurs une dépendance angulaire, qui est celle que l'on peut déduire de l'image classique représentant les atomes comme des oscillateurs : il varie comme le produit scalaire des projections de $\langle m_2 | \mathbf{D} | \mu_2 \rangle$ et $\langle \mu_1 | \mathbf{D} | m_1 \rangle$ sur un plan perpendiculaire à R_{12} . Le facteur exponentiel $e^{i[(m_2 - m_1)\omega_0 + (\mu_1 - \mu_2)\omega]t}$ correspond à la différence d'énergie entre les états $|1\mu_1, 2m_2\rangle$ et $|1m_1, 2\mu_2\rangle$ et le facteur $e^{ia_{12}t}$ traduit le décalage en fréquence dû à l'effet Doppler des photons de résonance émis par l'atome 1 et absorbés par l'atome 2. Le facteur $e^{ik_0 R_{12}}$ contenu dans

$$\Gamma(1\mu_1, 2m_2; 1m_1, 2\mu_2; t)$$

correspond enfin au déphasage de l'onde lumineuse sur le trajet R_{12} . L'effet de retard dans la propagation de l'onde est encore contenu dans le facteur $e^{c(t-R_{12})}$ (formule (I,42)), mais il a été ensuite négligé d'après l'hypothèse $|\rho R_{12}| \ll 1$.

Notons enfin qu'une résolution de (I,45) par un développement en puissance de $\frac{1}{k_0 R_{12}}$, c'est-à-dire en considérant le couplage comme une perturbation, conduira bien à une solution en somme d'exponentielles e^{ct} satisfaisant à la condition $|\rho| \ll k_0$.

C) CAS OU IL EXISTE UN CHAMP DE RADIOFRÉQUENCE. — On effectue alors des changements de variables du type (I,32) qui sont les mêmes pour les 2 types d'états $|1\mu_1, 2m_2\rangle$ et $|1m_1, 2\mu_2\rangle$, puisque la radiofréquence agit de façon identique sur l'état excité de chaque atome en donnant les

mêmes éléments de matrice. On obtient ainsi les équations

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} a'_{1\mu_1, 2m_2} = & \left[\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + m_2(\omega_0 - \omega) \right] a'_{1\mu_1, 2m_2} \\ & + \sum_{m'_2 = m_2 \pm 1} K_{m_2 m'_2} a'_{1\mu_1, 2m'_2} \\ & + i \sum \Gamma(1\mu_1, 2m_2; 1m_1, 2\mu_2; t) \\ & \quad e^{ia_{12}t} e^{i(m_2 - m_1)(\omega - \omega_0)t} a'_{1m_1, 2\mu_2}. \end{aligned} \quad (I,46)$$

On a posé

$$a'_{1\mu_1, 2m_2} = e^{i(m_1\omega + \mu_1\omega_f)t} a_{1\mu_1, 2m_2}$$

Ainsi le champ de radiofréquence ne modifie pas la nature du couplage entre les états excités des 2 atomes. On peut alors, pour une valeur déterminée de μ_1 (ou μ_2) former avec les $2F + 1$ coefficients $a'_{1\mu_1, 2m_2}$ (ou $a'_{1m_1, 2\mu_2}$) un vecteur à $2F + 1$ composantes, désigné par $A(1\mu_1, 2)$ (ou $A(1, 2\mu_2)$). Les coefficients

$$\Gamma(1\mu_1, 2m_2; 1m_1, 2\mu_2; t) e^{i(m_2 - m_1)(\omega - \omega_0)t}$$

forment une matrice de rang $2F + 1$ pour μ_1 et μ_2 fixés, $C(1\mu_1, 2\mu_2; t)$ et les équations d'évolution des vecteurs A sont du type :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} A(1\mu_1, 2) = & \left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \mathcal{H} \right) A(1\mu_1, 2) \\ & + i \sum_{\mu_2} C(1\mu_1, 2\mu_2; t) e^{ia_{12}t} A(1, 2\mu_2) \end{aligned} \quad (I,47)$$

où $\mathcal{H}$ est la matrice de rang $2F + 1$:

$$\mathcal{H} = (\omega_0 - \omega) F_z + \gamma H_1 F_x.$$

D'après la formule (I,44) on peut écrire C sous la forme :

$$\begin{aligned} C(1\mu_1, 2\mu_2; t) = & \frac{3}{4} i \Gamma \frac{e^{ik_0 R_{12}}}{k_0 R_{12}} \\ & \sum_{\lambda} e^{iF_z \omega t} \langle \mathbf{u}_{\lambda} | \mathbf{D} | \mu_2 \rangle e^{-iI_z \omega t} |\mu_2\rangle \langle \mu_1 | e^{iI_z \omega t} \langle \mathbf{u}_{\lambda} | \mathbf{D} | \mu_1 \rangle e^{-iF_z \omega t}. \end{aligned} \quad (I,48)$$

Notons que l'équation (I,47) est valable en l'absence de champ de radiofréquence (il suffit de faire $\omega = 0$ et $\gamma H_1 = 0$).

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BROSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 1213.
- [2] BITTER (F.) et BROSEL (J.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 308. BROSEL (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
- [3] BLAMONT (J. E.), *Thèse*, Paris, 1957 ; *Ann. Physique*, 1957, **2**, 551.
- [4] GUIOCHON (M. A.), BLAMONT (J. E.) et BROSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1859 ; *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 99.
- [5] ROLLET (N.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1955. ROLLET (N.), BROSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 240. GUIOCHON (M. A.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1956. BOUTRON (F.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1957. BARRAT (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 2785.
- [6] BOUTRON (F.), BARRAT (J. P.) et BROSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 2250. BARRAT (J. P.) et BROSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744. BARRAT (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 858.
- [7] BARRAT (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959, n° de microfilm C. N. R. S 38 808.
- [8] WEISSKOPF (V.), *Ann. Physik*, 1931, **9**, 23. BREIT (G.), *Rev. Mod. Physics*, 1933, **5**, 91.
- [9] DYSON (F. J.), "Advanced Quantum Mechanics", Cours professé à l'Université Cornell.
- [10] HEITLER (W.), "The Quantum Theory of Radiation", 3^e édition.
- [11] Voir CONDON (E. U.) et SHORTLEY (G. H.), "The Theory of Atomic Spectra".
- [12] RAMSEY (N. F.), "Molecular Beams", p. 146.

II. ÉTUDE THÉORIQUE.

(2^e partie)

Dans la première partie [1], nous avons exposé la méthode utilisée pour traiter le problème de la résonance optique, dans le cas d'un atome isolé, puis de 2 atomes. Nous généralisons ici au cas des $\mathcal{N}$ atomes d'une vapeur. Les notations et hypothèses sont les mêmes que dans le premier chapitre [1].

1. Cas général d'un système de $\mathcal{N}$ atomes. —

A) NOTATIONS ET ÉQUATIONS DU PROBLÈME. — Les atomes seront numérotés 1, 2 ... $\mathcal{N}$, et leurs positions à l'instant 0 seront les points $\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2 \dots \mathbf{R}_{\mathcal{N}}$; leurs vitesses seront $\mathbf{V}_1, \dots, \mathbf{V}_{\mathcal{N}}$. On définira de même qu'en I,3, c, les vecteurs à $2F+1$ éléments, $A[1\mu_1, \dots; ne; \dots, \mathcal{N}, \mu_{\mathcal{N}}; t]$ dont les composantes sur les vecteurs de base $|m_n\rangle$ de l'espace à $2F+1$ dimensions utilisé sont $a[1, \mu_1; \dots; n, m_n; \dots, \mathcal{N}, \mu_{\mathcal{N}}; t]$, amplitudes de probabilité (au facteur $e^{i(m_n\omega + \mu_1\omega + \dots + \mu_{\mathcal{N}}\omega)t}$ près) pour que tous les atomes soient dans les sous-niveaux $\mu_1 \dots \mu_{\mathcal{N}}$, de l'état fondamental, sauf le n ième, qui est dans le sous-niveau m_n de l'état excité. Les équations d'évolution de ces vecteurs sont obtenues comme dans le problème à 2 atomes

$$\begin{aligned} \frac{id}{dt} A[1\mu_1, \dots, ne, \dots, \mathcal{N}\mu_{\mathcal{N}}; t] \\ = \left[\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \mathcal{H} \right] A[1\mu_1, \dots, ne, \dots, \mathcal{N}\mu_{\mathcal{N}}; t] \\ + i \sum_{n, \mu_n} C(n', \mu_{n'}; n, \mu_n; t) \\ e^{ia_{n'} n' t} A[1\mu_1, \dots, n\mu_n, \dots, n'e, \dots, \mathcal{N}\mu_{\mathcal{N}}; t] \quad (\text{II},1) \end{aligned}$$

les C étant définis comme dans l'équation (I,48) (1).

B) MÉTHODE DE RÉOLUTION DES ÉQUATIONS (II,1). — Il est naturellement impossible de résoudre sans approximations le système des équations (II,1). Pour obtenir une solution approchée, nous utiliserons le fait que l'ordre de grandeur des coefficients des matrices C est $\Gamma/k_0 R$, où R désigne la distance entre 2 atomes arbitraires, alors que les coefficients de la matrice $\mathcal{H}$ sont de l'ordre de Γ dans les cas intéressants. Or $k_0 R$ a été supposé grand devant 1 (I,39). Le couplage entre les divers vecteurs A apparaît donc comme une perturbation. Nous ferons un développement en série par rapport à ces termes, en résolvant les équations (II,1) par approximations successives et en prenant comme

état initial, celui dans lequel tous les vecteurs A sont nuls, sauf l'un d'eux, $A(1, \mu_1, \dots, n_0 e, \dots; 0)$ (c'est-à-dire qu'on suppose l'atome n_0 excité à l'instant initial). Chaque vecteur A est une somme de contributions $A^{(p)}$ de même argument, correspondant à l'ordre p dans la méthode d'approximations successives :

$$\begin{aligned} A^{(p)}[1\mu_1, \dots, n_0, \mu_{n_0}, \dots, n_1, \mu_{n_1}, \dots, n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}, n_p e, \dots; t] \\ = \sum_{n, \mu_n} e^{-i\left(\tilde{k}_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \mathcal{H}\right)t} \\ \times \int_0^t dt_p \int_0^{t_p} dt_{p-1} \dots \int_0^{t_2} dt_1 e^{i\mathcal{H}t_p} e^{ia_{n_{p-1}} n_{p-1} t_p} \\ C(n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}; n_p, \mu_{n_p}; t_p) e^{-i\mathcal{H}t_p} \\ e^{i\mathcal{H}t_{p-1}} e^{ia_{n_{p-2}} n_{p-2} t_{p-1}} \\ C(n_{p-2}, \mu_{n_{p-2}}; n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}; t_{p-1}) e^{-i\mathcal{H}t_{p-1}} \\ \times e^{i\mathcal{H}t_1} e^{ia_{n_0 n_1} t_1} C(n_0, \mu_{n_0}; n_1, \mu_{n_1}; t_1) e^{-i\mathcal{H}t_1} \\ A(1, \mu_1, \dots; n_0 e, \dots; n_1, \mu_{n_1}, \dots, n_p, \mu_{n_p}; \dots; 0). \quad (\text{II},2) \end{aligned}$$

L'interprétation physique d'un tel terme est claire : l'état $|1\mu_1, \dots, n_0, \mu_{n_0}, \dots, n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}, n_p e, \dots\rangle$ est obtenu à partir de l'état initial $|1\mu_1, \dots, n_0 e, \dots, n_1, \mu_{n_1}, \dots, n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}, n_p, \mu_{n_p}, \dots\rangle$ par l'intermédiaire de p passages d'un photon d'un atome à un autre, constituant ce que nous appellerons un *chemin*. Ce chemin conduit le photon successivement de l'atome n_0 à l'atome n_1 , de l'atome n_1 à l'atome n_2 ... de l'atome n_{p-1} à l'atome n_p ; après diffusion du photon, ces atomes sont passés des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental $\mu_{n_1}, \mu_{n_2}, \dots, \mu_{n_{p-1}}$ aux sous-niveaux $\mu_{n_1}, \mu_{n_2}, \dots, \mu_{n_p}$ respectivement. La valeur de $A^{(p)}$ s'obtient en sommant sur tous les chemins possibles. Nous aurons pratiquement besoin des grandeurs

$$\sum_n \sum_{\mu_1, \dots, \mu_{n-1}} a_{1, \mu_1, \dots, n-1, \mu_{n-1}; n, m; \dots, \mathcal{N}\mu_{\mathcal{N}}}(t) a_{1, \mu_1, \dots, n-1, \mu_{n-1}; n, m'; \dots, \mathcal{N}\mu_{\mathcal{N}}}(t)$$

qui sont les éléments (m, m') de la matrice densité $\rho(t)$ représentant l'état d'excitation de l'ensemble du système, définie par

$$\begin{aligned} \rho(t) = \sum_n \sum_{\mu_1, \dots, \mu_{n-1}} |A(1\mu_1, \dots, ne, \dots; t)\rangle \langle A^*(1\mu_1, \dots, ne, \dots; t)|. \quad (\text{II},3) \end{aligned}$$

En principe la valeur de A doit être obtenue en sommant tous les $A^{(p)}$ de même argument.

(1) Les équations de la première partie sont précédées de I, celles de la 2^e partie de II.

Chaque $A^{(p)}$ est lui-même la somme d'un grand nombre de termes, correspondant à tous les chemins possibles d'ordre p qui font passer le système d'un même état initial à un même état final. Si l'on effectue ce développement, l'expression (II,3) est la somme de termes de 2 sortes : les uns, qui seront dits « carrés », sont des produits de 2 facteurs complexes conjugués l'un de l'autre correspondant au même chemin, les autres, qui seront dits « rectangles » correspondent à l'interférence entre les contributions de 2 chemins différents. Or chaque terme de (II,2) contient un facteur de phase dû aux exponentielles $e^{ik_0 R_{nm}}$ qui figurent dans les matrices C définies par (I,48); ces facteurs de phase disparaissent dans les termes « carrés », mais subsistent en général dans les termes « rectangles » lorsque le chemin suivi par le photon n'a pas la particularité que nous envisagerons plus loin. L'hypothèse selon laquelle $k_0 R_{nm} \gg 1$ implique une variation très rapide et aléatoire de ces facteurs d'un terme d'interférence à un autre, puisque les atomes sont disposés au hasard. Nous admettrons qu'il en résulte l'annulation en moyenne des effets d'interférence entre les contributions de différents chemins. Nous ne calculerons donc que les termes « carrés » et nous sommerons ensuite sur tous les chemins possibles et sur tous les ordres possibles.

Toutefois, il existe des termes d'interférence non négligeables entre la contribution d'ordre p d'un chemin C et la contribution d'ordre $p + q$ d'un chemin C' , si ces 2 chemins ont la particularité suivante : le chemin C' comporte tous les atomes du chemin C et dans le même ordre, mais il existe en outre q atomes dans le chemin C' qui sont placés entre 2 atomes A et B du chemin C et par lesquels le photon est diffusé sans modifier leurs sous-niveaux Zeeman dans l'état fondamental. De plus, il faut que ces q atomes soient suffisamment près

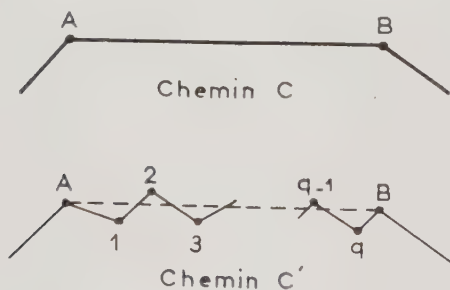


FIG. II, 1.

de la droite AB et situés dans leur ordre de succession 1, 2 ... q près de cette droite, de sorte que les facteurs de phase $e^{ik_0 R_{AB}}$ et $e^{ik_0(R_{A1} + R_{12} + \dots + R_{qB})}$ ne diffèrent pratiquement pas (cf. fig. II,1). Il faut pour cela que

$$|R_{A1} + R_{12} + \dots + R_{qB} - R_{AB}| \ll 2\pi/k_0 = \Lambda \quad (\text{II,4})$$

longueur d'onde du rayonnement optique de réso-

nance. Inversement, à chaque chemin C dans lequel on ne peut pas trouver 3 atomes consécutifs alignés, on peut faire correspondre une infinité de chemins analogues à C' ; la différence entre ce chemin C et les chemins C' consiste en q atomes placés entre les atomes 0 et A du chemin C , q' entre les atomes A et B , etc... Il est clair qu'on pourra rendre compte de l'effet d'interférence en sommant les amplitudes A correspondant à tous les chemins C' associés à un chemin C déterminé; ce calcul fait l'objet du paragraphe C suivant. Ensuite, nous sommerons tous les termes « carrés » de l'expression (II,3) dus à tous les chemins C possibles, en tenant compte dans ce dernier calcul de l'effet des chemins C' associés aux chemins C . L'approximation consistant à tenir compte des interférences des termes correspondant aux chemins C' et non de celles dues aux termes correspondant aux chemins C n'est autre que l'approximation dite « de la phase stationnaire » utilisée par L. I. Schiff [2] pour améliorer l'approximation de Born dans les problèmes de diffusion aux hautes énergies; nous aurons à utiliser l'un de ses résultats.

A ce point du calcul, il importe de noter ce qui maintient dans notre formalisme la *cohérence* nécessaire pour expliquer l'affinement des raies de résonance magnétique. Il ne s'agit pas de la cohérence entre les contributions des divers chemins C , puisqu'en général on néglige l'effet de leur interférence. Mais il s'agit de la cohérence entre les coefficients a qui sont les composantes des vecteurs A . Lors du calcul de la contribution (II,3) d'un chemin C , nous ne raisonnons à aucun moment en termes de *populations* de niveaux ou d'*intensités* lumineuses; tout le calcul est mené au moyen des *amplitudes de probabilité* a' , liées entre elles par la matrice $\mathcal{H}$ lorsqu'elles correspondent à l'excitation d'un même atome (d'où les transitions induites par la radiofréquence) et par les matrices C lorsqu'elles correspondent à l'excitation d'atomes différents (passage de l'excitation d'un atome à un autre par l'intermédiaire du champ de rayonnement, c'est-à-dire par diffusion multiple). C'est en cela que le calcul exposé ici diffère d'une interprétation simpliste ne tenant pas compte de la cohérence [3], et c'est grâce à ces effets de cohérence qu'il permet de comprendre les phénomènes observés expérimentalement.

C) CALCUL DE L'EFFET DES CHEMINS C' . — Si les

chemins C' ne diffèrent d'un chemin C que par q atomes placés entre 2 atomes A et B , le calcul de l'expression (II,2) jusqu'à l'atome A sera le même et donnera la contribution $\Phi_{0A}(t)$ pour les 2 sortes de chemins. De A à B , le calcul sur le chemin C donne :

$$C = \int_0^t e^{i\mathcal{H}t'} e^{ia_{AB}t'} C(A, \mu_A; B, \mu'_B; t') e^{-i\mathcal{H}t'} \Phi_{0A}(t') dt' \quad (\text{II,5})$$

et sur les chemins C' :

$$C' = \sum_{1 \dots q} \int_0^t dt_{q+1} \int_0^{t_{q+1}} dt_q \dots \int_0^t dt_1 e^{i\mathcal{L}t_{q+1}} e^{ia_{qB}t_{q+1}} \\ \times e^{i\mathcal{L}t_q} e^{ia_{q-1}t_q} C(q-1, \mu_{q-1}; q, \mu_q; t_q) e^{-i\mathcal{L}t_q} \dots \\ \times e^{i\mathcal{L}t_1} e^{ia_{A1}t_1} C(A, \mu_A; 1, \mu_1; t_1) e^{-i\mathcal{L}t_1} \Phi_{OA}(t_1). \quad (\text{II},6)$$

Nous poserons dans ce qui suit :

$$\mathcal{O}(1, \mu_1; 2, \mu_2; t) = \frac{4k_0 R_{12}}{3i\Gamma e^{ik_0 R_{12}}} C(1, \mu_1, 2, \mu_2; t). \quad (\text{II},7)$$

L'équation (II,6) prend alors la forme

$$C' = \left(\frac{3i\Gamma}{4}\right)^{q+1} \sum_{1 \dots q} \frac{e^{ik_0(R_{A1} + \dots + R_{qB})}}{k_0^{q+1} R_{A1} \dots R_{qB}} \int_0^t dt_{q+1} \int_0^{t_{q+1}} dt_q \dots \int_0^t dt_1 \\ e^{i\mathcal{L}t_{q+1}} e^{ia_{qB}t_{q+1}} \mathcal{O}(q, \mu_q; B, \mu'_B; t_{q+1}) e^{-i\mathcal{L}t_{q+1}} \dots \\ \times e^{i\mathcal{L}t_1} e^{ia_{A1}t_1} C(A, \mu_A; 1, \mu_1; t_1) e^{-i\mathcal{L}t_1} \Phi_{OA}(t_1). \quad (\text{II},8)$$

On sait *a priori* d'après le raisonnement fait en B) que les seuls atomes 1, 2 ... q qui peuvent apporter une contribution importante sont presque alignés sur le segment AB , dans l'ordre 1, 2 ... q . Nous pourrions donc effectuer la sommation sur tous les chemins C' possibles comme si les atomes étaient ainsi effectivement alignés, sauf en ce qui concerne le facteur

$$\frac{e^{ik_0(R_{A1} + \dots + R_{qB})}}{k_0^{q+1} R_{A1} \dots R_{qB}}.$$

Ce dernier facteur sera ensuite intégré comme si les atomes étaient répartis uniformément dans l'espace avec une densité N par unité de volume (méthode analogue à la méthode du col).

Nous remplacerons les diverses sommations par des intégrations, étant donné la forte densité d'atomes dans le volume envisagé ($N \sim 10^{10}$ à 10^{14} atomes par cm^3). Nous admettrons, pour simplifier, que tous les atomes sont animés de la même vitesse v que nous prendrons égale à la vitesse quadratique moyenne. On montre en appendice n° 1 que la sommation sur toutes les orientations possibles des vitesses revient à effectuer l'intégration

$$\frac{1}{(2k_0 v)^q} \int \dots \int da_{A1} da_{12} \dots da_{q-1q}.$$

On tient compte en outre du fait que pour des atomes alignés

$$a_{qB} = a_{AB} - (a_{A1} + a_{12} + \dots + a_{q-1q}).$$

L'intégrale à évaluer donnant la moyenne de C' sur la vitesse des atomes 1, 2 ... q , est alors

$$\frac{1}{(2k_0 v)^q} \int \dots \int da_{A1} \dots da_{q-1q} e^{ia_{AB}t_{q+1}} \\ e^{ia_{A1}(t_1 - t_{q+1})} e^{ia_{12}(t_2 - t_{q+1})} \dots e^{ia_{q-1q}(t_q - t_{q+1})} \\ = \lim_{\alpha \rightarrow \infty} \frac{1}{(k_0 v)^q} e^{ia_{AB}t_{q+1}} \frac{\sin \alpha(t_1 - t_{q+1})}{t_1 - t_{q+1}} \dots \frac{\sin \alpha(t_q - t_{q+1})}{t_q - t_{q+1}}.$$

L'intégrale qui reste à effectuer sur $t_1, t_2 \dots t_{q+1}$ est calculée au moyen du changement de variables :

$$\begin{cases} t_{q+1} - t_1 = u_1 \\ t_{q+1} - t_2 = u_2 \\ \dots \dots \dots \\ t_{q+1} - t_q = u_q. \end{cases}$$

Elle prend la forme, en représentant par G tout ce qui dépend de $t_1 \dots t_{q+1}$:

$$\lim_{\alpha \rightarrow \infty} \int_0^t dt_{q+1} \int_0^{t_{q+1}} du_1 \int_0^{u_1} du_2 \\ \dots \int_0^{u_{q-1}} du_q \frac{1}{(k_0 v)^q} e^{ia_{AB}t_{q+1}} \frac{\sin \alpha u_1}{u_1} \dots \frac{\sin \alpha u_q}{u_q} \\ \times G(t_{q+1} - u_1, t_{q+1} - u_2, \dots, t_{q+1} - u_q, t_{q+1}) \\ = \left(\frac{\pi}{2k_0 v}\right)^q \int_0^t dt_{q+1} e^{ia_{AB}t_{q+1}} G(t_{q+1}, t_{q+1}, \dots, t_{q+1}). \quad (\text{II},9)$$

En utilisant ce résultat, on trouve :

$$C' = \frac{3i\Gamma}{4} \left(\frac{3i\pi}{8k_0 v}\right)^q \sum_{1 \dots q} \frac{e^{ik_0(R_{A1} + \dots + R_{qB})}}{k_0^{q+1} R_{A1} \dots R_{qB}} \\ \int_0^t dt' e^{ia_{AB}t'} e^{i\mathcal{L}t'} \times \mathcal{O}(q, \mu_q; B, \mu'_B; t') \\ \mathcal{O}(q-1, \mu_{q-1}; q, \mu_q; t') \\ \dots \mathcal{O}(A, \mu_A; 1, \mu_1; t') e^{-i\mathcal{L}t'} \Phi_{OA}(t'). \quad (\text{II},10)$$

La sommation ne porte plus que sur les positions des atomes puisque la moyenne sur les vitesses a été effectuée. Si l'on admet une répartition uniforme des atomes entre les sous-niveaux de l'état fondamental, on doit également faire la moyenne sur $\mu_1, \mu_2, \dots, \mu_q$. En revenant aux définitions (I,48) et (II,7), on peut montrer (cf. appendice n° 2) que cette moyenne donne pour le produit des opérateurs $\mathcal{O}$ de l'expression (II,10) le résultat

$$\left[\frac{2F+1}{8(2I+1)}\right]^q \mathcal{O}(A, \mu_A; B, \mu'_B; t').$$

Enfin l'intégration sur les positions des atomes (cf. réf. 1, appendice n° 5 et réf. 2a), appendice B) conduit, en négligeant des termes d'ordre supérieur en $\frac{1}{k_0 R_{AB}}$ au facteur

$$\frac{1}{q!} \left(\frac{i 2\pi N R_{AB}}{k_0}\right)^q \frac{e^{ik_0 R_{AB}}}{k_0 R_{AB}}.$$

Ainsi, l'expression C' vaut :

$$C' = \frac{1}{q!} \frac{3i\Gamma}{4} \left[-\frac{\pi^2}{2} \times \frac{2F+1}{2I+1} \times \frac{N\Gamma R_{AB}}{2k_0^3 v}\right]^q \frac{e^{ik_0 R_{AB}}}{k_0 R_{AB}} \\ \times \int_0^t dt' e^{ia_{AB}t'} e^{i\mathcal{L}t'} \mathcal{O}(A, \mu_A; B, \mu'_B; t') e^{-i\mathcal{L}t'} \Phi_{OA}(t') \\ = \frac{1}{q!} \left(-\frac{\pi^2}{2} \times \frac{2F+1}{2I+1} \times \frac{N\Gamma R_{AB}}{2k_0^3 v}\right)^q C \quad (\text{II},11)$$

C étant donné par (II,5). Si on ajoute toutes les contributions C' correspondant à tous les ordres q , on trouve enfin

$$\sum_q C' = e^{-KNR_{AB}} C \quad (\text{II},12)$$

en posant

$$K = \frac{\pi^2}{4} \times \frac{2F+1}{2I+1} \times \frac{\Gamma}{k_0^3 v}. \quad (\text{II},13)$$

L'interprétation physique de ce résultat est claire : le seul effet de l'ensemble des chemins C' est de modifier le résultats du calcul de la contribution du chemin C par le facteur $e^{-KNR_{AB}}$ qui traduit l'absorption du rayonnement par les atomes qui se trouvent entre les atomes A et B . Si l'on envisage non plus seulement les chemins C' particuliers précédents, mais tous les chemins C' possibles associés à un chemin C déterminé, il suffira pour en tenir compte de remplacer dans le calcul les matrices $C(1\mu_1; 2\mu_2; t)$ par les matrices

$$C'(1, \mu_1; 2, \mu_2; t) = e^{-KNR_{12}} C(1, \mu_1; 2, \mu_2; t). \quad (\text{II},14)$$

C'est ainsi que le calcul sera mené par la suite.

D) DÉTERMINATION DE LA MATRICE DENSITÉ $\rho(t)$. Nous devons maintenant évaluer l'expression (II,3) au moyen du développement (II,2), en remplaçant les matrices C par les matrices C' définies par (II,14) et en ne calculant que les termes « carrés ». Nous effectuerons la sommation sur les p atomes du chemin C en intégrant d'abord sur les coefficients $a_{n_0 n_1}, a_{n_1 n_2} \dots$ avec le poids $\frac{1}{(2k_0 v)^p}$ (moyenne sur les vitesses relatives possibles, cf. appendice n° 1).

Les divers termes ont la forme

$$\begin{aligned} & \frac{1}{(2k_0 v)^p} \int \dots \int da_{n_{p-1} n_p} \dots da_{n_0 n_1} \int_0^t dt_p \int_0^{t_p} dt_{p-1} \\ & \dots \int_0^{t_2} dt_1 \int_0^{t_1} dt'_p \dots \int_0^{t'_2} dt'_1 e^{i a_{n_{p-1} n_p} (t_p - t'_p)} \\ & \dots e^{i a_{n_0 n_1} (t_1 - t'_1)} \times H(t_1, t_2 \dots t_p; t'_1, t'_2 \dots; t'_p) \\ & \simeq \left(\frac{\pi}{k_0 v}\right)^p \int_0^t dt_p \int_0^{t_p} dt'_p \dots \int_0^{t_2} dt_1 \int_0^{t'_2} dt'_1 \\ & \delta(t_p - t'_p) \dots \delta(t_1 - t'_1) H(t_1 \dots t_p; t'_1 \dots t'_p) \\ & = \left(\frac{\pi}{k_0 v}\right)^p \int_0^t dt_p \dots \int_0^{t_2} dt_1 H(t_1 \dots t_p; t_1 \dots t_p). \end{aligned}$$

En particulier, le terme « carré » représentant p diffusions successives, après moyenne sur les vitesses possibles, donne d'après (II,2) :

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\pi}{k_0 v}\right)^p e^{-\Gamma t} \int_0^t dt_p \dots \int_0^{t_2} dt_1 e^{-i\beta \mathcal{C}(t-t_p)} \\ & C'(n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}; n_p, \mu'_{n_p}; t_p) \\ & \dots e^{-i\beta \mathcal{C}_1} |A(1, \mu_1; \dots n_0 e \dots; 0) \rangle \\ & < A^*(1, \mu_1, \dots n_0 e \dots; 0) | e^{i\beta \mathcal{C}_1} \\ & \dots C'^*(n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}; n_p, \mu'_{n_p}; t_p) e^{i\beta \mathcal{C}(t-t_p)}. \quad (\text{II},15) \end{aligned}$$

Il reste à faire la somme de ces résultats sur toutes les positions possibles des atomes, c'est-à-dire à intégrer (II,15) avec l'élément d'intégration

$$N^p \int \dots \int d\mathbf{R}_{n_{p-1} n_p} d\mathbf{R}_{n_{p-2} n_{p-1}} \dots d\mathbf{R}_{n_0 n_1}.$$

Puis on doit effectuer la moyenne sur les valeurs initiales des μ ($\mu'_{n_1}, \mu'_{n_2} \dots \mu'_{n_p}$) et la sommation sur les valeurs finales ($\mu_{n_0}, \mu_{n_1}, \dots \mu_{n_{p-1}}$), ce qui conduit à calculer

$$\frac{1}{(2I+1)^p} \times \sum_{\substack{\mu'_{n_1} \dots \mu'_{n_p} \\ \mu_{n_0} \dots \mu_{n_{p-1}}}}$$

L'intégrale à faire sur les positions des atomes comporte une intégration sur les angles des vecteurs $\mathbf{R}$, puis une intégration sur leurs modules. Celle-ci conduit à calculer

$$\int \frac{9}{16} \frac{\Gamma^2}{(k_0 R)^2} e^{-2KNR} R^2 dR,$$

R étant la distance entre 2 atomes consécutifs des chemins C d'ordre p possibles. *A priori*, dans une cellule de forme quelconque contenant les atomes, la limite supérieure de chacune des intégrations sur $\mathbf{R}_{n_{p-1} n_p}, \mathbf{R}_{n_{p-2} n_{p-1}}, \dots \mathbf{R}_{n_0 n_1}$ dépend de la position des atomes $n_{p-1}, n_{p-2} \dots n_0$ respectivement et des angles polaires des vecteurs $\mathbf{R}_{n_{p-1} n_p}, \mathbf{R}_{n_{p-2} n_{p-1}}, \dots \mathbf{R}_{n_0 n_1}$. En effet, 2 atomes placés à des positions différentes dans la cellule ne sont pas à la même distance des parois qui fixent la limite supérieure d'intégration. Toutefois, la seule façon de poursuivre le calcul est de supposer qu'une bonne approximation consiste à donner une valeur fixe L à la borne supérieure de l'intégrale, indépendante des paramètres précédemment cités. Cela revient à dire que l'on fait le calcul comme si chaque atome était placé de manière identique par rapport aux parois de la cellule ; en fait, chaque atome serait le centre d'une sphère de rayon L formée par les parois. Cette approximation est évidemment grossière ; elle doit être d'autant plus valable que les dimensions de la cellule sont plus grandes devant la longueur de diffusion moyenne des photons, c'est-à-dire que la pression de vapeur est plus grande. Les résultats obtenus ainsi ne sont pas en désaccord trop grossier avec l'expérience. Cette approximation conduit en tout cas à remplacer les intégrales sur les modules des vecteurs $\mathbf{R}$ par le facteur

$$\begin{aligned} & \left[\frac{9}{16} \frac{\Gamma^2}{k_0^2} \frac{1 - e^{-2KNL}}{2KN} \right]^p \\ & = \left[\frac{9}{8\pi^2} \frac{\Gamma k_0 v}{N} \frac{2I+1}{2F+1} (1 - e^{-2KNL}) \right]^p. \end{aligned}$$

Nous poserons, dans tout ce qui suit :

$$x = 1 - e^{-2KNL}. \quad (\text{II},16)$$

Nous montrerons plus loin que la signification physique de ce paramètre est la suivante : avec le modèle approximatif que nous avons choisi, x représente la probabilité totale pour qu'un photon, émis par un atome de la vapeur, soit réabsorbé au moins une fois avant de sortir de la cellule.

La contribution au résultat des termes « carrés » d'ordre p est donc

$$\left[\frac{9x\Gamma}{8\pi(2F+1)} \right]^p e^{-\Gamma t} \sum_{\substack{\mu'_1 \dots \mu'_p \\ \mu_n \dots \mu_{p-1}}} \sum_{\text{angles}} \int_0^t dt_p \int_0^{t_p} dt_{p-1} \dots \int_0^{t_1} dt_1 e^{-i\mathcal{L}(t-t_p)} \mathcal{O}(n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}; n_p, \mu'_{n_p}; t_p) \times e^{-i\mathcal{L}(t_p-t_{p-1})} \dots e^{-i\mathcal{L}(t_1-t)} \mathcal{O}(n_0, \mu_{n_0}; n_1, \mu'_{n_1}; t_1) e^{-i\mathcal{L}t_1} |A(1, \mu_1; \dots n_0 e \dots; 0) \rangle \langle A^*(1, \mu_1; \dots n_0 e \dots; 0) | e^{i\mathcal{L}t_1} \mathcal{O}^*(n_0, \mu_{n_0}; n_1, \mu'_{n_1}; t_1) e^{i\mathcal{L}(t_1-t)} \dots e^{i\mathcal{L}(t_p-t_{p-1})} \mathcal{O}^*(n_{p-1}, \mu_{n_{p-1}}; n_p, \mu'_{n_p}; t_p) e^{i\mathcal{L}(t-t_p)} \quad (\text{II}, 17)$$

(la sommation porte sur les angles polaires des vecteurs $\mathbf{R}$).

Or $|A(1, \mu_1; \dots n_0 e; \dots; 0) \rangle \langle A^*(1, \mu_1; \dots n_0 e; \dots; 0)|$ n'est autre que la matrice densité $\rho(0)$ qui représente l'état initial du système.

Nous poursuivrons le calcul en évaluant

$$\rho' = \sum_{\substack{\mu'_1 \dots \mu'_p \\ \mu_n \dots \mu_{p-1}}} \sum_{\text{angles}} e^{i\mathcal{L}t_1} \mathcal{O}(n_0, \mu_{n_0}; n_1, \mu'_{n_1}; t_1) e^{-i\mathcal{L}t_1} \rho(0) e^{i\mathcal{L}t_1} \mathcal{O}^*(n_0, \mu_{n_0}; n_1, \mu'_{n_1}; t_1) e^{-i\mathcal{L}t_1}.$$

Le détail des calculs est donné dans l'appendice n° 3 ; dans les cas pratiquement intéressants, il conduit à un résultat de la forme

$$\rho' = \frac{8\pi}{9} (2F+1) \left[x\rho(0) + \frac{1-x}{2F+1} \text{II} \right]$$

II étant la matrice unité de rang $2F+1$, α étant une constante dépendant de I et F .

On en déduit par récurrence que (II,17) s'écrit :

$$\rho^{(p+1)}(t) = \left(\frac{9}{8\pi} \frac{x\Gamma}{2F+1} \right)^p e^{-\Gamma t} \int_0^t dt_p \int_0^{t_p} dt_{p-1} \dots \int_0^{t_1} dt_1 e^{-i\mathcal{L}t} \times \left[\frac{8\pi}{9} (2F+1) \right]^p \left[x^p \rho(0) + \frac{1-x^p}{2F+1} \text{II} \right] e^{i\mathcal{L}t} = \frac{(x\Gamma t)^p}{p!} e^{-\Gamma t} e^{-i\mathcal{L}t} \left[x^p \rho(0) + \frac{1-x^p}{2F+1} \text{II} \right] e^{i\mathcal{L}t} \quad (\text{II}, 18)$$

On voit qu'au bout d'un temps d'excitation très long le nombre d'atomes excités par un photon qui a déjà été diffusé p fois est proportionnel à x^p , ce qui justifie l'interprétation physique donnée plus haut.

Après sommation sur tous les ordres p , on obtient

$$\rho(t) = e^{-\Gamma(1-\alpha x)t} \left\{ e^{-i\mathcal{L}t} \rho(0) e^{i\mathcal{L}t} - \frac{1}{2F+1} \text{II} \right\} + \frac{e^{-\Gamma(1-\alpha x)t}}{2F+1} \text{II}. \quad (\text{II}, 19)$$

Ce résultat permet d'obtenir les intensités lumineuses émises dans les différentes directions de l'espace, et leurs états de polarisation correspondants, qui peuvent directement être comparés aux résultats expérimentaux.

2. Calcul des intensités lumineuses émises. — Nous calculerons les amplitudes de probabilité $b(1\mu_1; 2\mu_2; \dots \mathcal{M}_{\mu\mathcal{M}}; \mathbf{k}, \lambda; t)$ correspondant à l'état dans lequel tous les atomes sont au niveau fondamental, en présence d'un photon caractérisé par $\mathbf{k}$ et λ , en utilisant les équations du type (I,12). Nous négligerons dans ce calcul les interférences entre les rayonnements émis par les différents atomes en raison de leur répartition au hasard dans l'espace. Il suffit donc d'étudier le rayonnement émis par un atome n et de sommer sur tous les atomes n les intensités lumineuses obtenues. On obtient ainsi

$$|b(1\mu_1; \dots, \mathcal{M}_{\mu\mathcal{M}}; \mathbf{k}, \lambda; \infty)|^2 = \sum_{\mathbf{n}\mathbf{m}'\mathbf{m}''} |A_{\mathbf{k}}|^2 \int_0^\infty dt' \int_0^\infty dt'' \langle \mu_n | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mathbf{m}' \rangle \langle \mathbf{m}' | A(1\mu_1; \dots n e \dots; t') \rangle \langle A^*(1\mu_1; \dots n e \dots; t'') | \mathbf{m}'' \rangle \langle \mathbf{m}'' | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu_n \rangle e^{i(\mathbf{k} \cdot \mu_n \omega t' - \mathbf{k} \cdot \nu_{\mathbf{n}'} \cdot t'' - t'')} e^{-i(\mathbf{m}' \omega t' - \mathbf{m}'' \omega t'')}. \quad (\text{II}, 20)$$

L'intensité totale $I(\lambda) \Delta\Omega$ émise avec la polarisation λ dans un angle solide $\Delta\Omega$ autour d'une direction déterminée s'obtient en faisant la sommation de (II,20) sur $\mu_1 \dots \mu_{\mathcal{M}}$ et en intégrant sur $\mathbf{k}$ avec le poids $\rho(\mathbf{k}) d\mathbf{k} \Delta\Omega$. Les seules valeurs importantes de $\mathbf{k}$ étant au voisinage de $\tilde{\mathbf{k}}_0$, on obtient

$$I(\lambda) \Delta\Omega \simeq 2\pi |A_{\tilde{\mathbf{k}}_0}|^2 \rho(\tilde{\mathbf{k}}_0) \Delta\Omega \sum_{\mu\mathbf{m}'\mathbf{m}''} \langle \mu | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mathbf{m}' \rangle \left[\int_0^\infty dt e^{-im'\omega t} \langle \mathbf{m}' | \rho(t) | \mathbf{m}'' \rangle e^{im''\omega t} \right] \langle \mathbf{m}'' | \mathbf{e}_\lambda \cdot \mathbf{D} | \mu \rangle. \quad (\text{II}, 21)$$

Ce résultat est exactement celui qu'on obtiendrait en l'absence de tout effet de diffusion multiple, mais dans ce dernier cas la matrice $\rho(t)$ serait $\rho_0(t) = e^{-\Gamma t} e^{-i\mathcal{L}t} \rho(0) e^{i\mathcal{L}t}$, caractérisant l'évolution

de la fonction d'onde d'un seul atome en présence du champ de radiofréquence (d'où l'Hamiltonien $\mathcal{H}$) et du champ de rayonnement (d'où le facteur $e^{-\Gamma t}$). Ici $\rho(t)$ est donné par (II,19). Les intensités lumineuses, d'après (II,21) dépendent linéairement de $\rho(t)$, c'est-à-dire que chaque terme de (II,19) apporte séparément sa contribution.

3. Interprétation physique du résultat. — Le 1^{er} terme de (II,19) donne une contribution I_1 à l'intensité lumineuse qui est la même que pour un phénomène de diffusion simple pour un atome dont la durée de vie serait

$$T = \frac{1}{\Gamma(1 - \alpha x)} = \frac{\tau}{1 - \alpha x} \quad (\text{II,22})$$

Le 2^e et le 3^e terme de (II,19) correspondent à une distribution uniforme des populations entre les sous-niveaux Zeeman de l'état excité. La lumière correspondante I_2 est donc totalement dépolarisée et sa répartition dans l'espace est isotrope.

Les méthodes de mesure de durée de vie que nous avons utilisées consistent à étudier la variation en fonction de divers paramètres (champ H_0 , champ H_1 , etc.) soit des intensités I_π ou I_σ , soit de la différence $I_\pi - I_\sigma$, soit du taux de polarisation $\frac{I_\pi - I_\sigma}{I_\pi + I_\sigma}$, dans une direction déterminée.

Seules les intensités I_1 varient avec ces paramètres les intensités I_2 en sont indépendantes ; par suite ces méthodes donnent non pas le paramètre τ

TABEAU 1

	α	$T_{I,F}(N)$	$c_{I,F}(N)$
$I = 0$ $F = J = 1$ (isotopes pairs)	$\frac{7}{10}$	$\frac{\tau}{1 - \frac{7x_p}{10}}$	$x_{0,1}(N) = x_p(N)$
$I = 1/2$ $F = 3/2$ (isotope 199)	$\frac{7}{20}$	$\frac{\tau}{1 - \frac{7}{20} x_{1/2,3/2}(N)}$	$x_{1/2,3/2}(N) = x_p\left(\frac{2N}{3}\right)$
$I = 3/2$ $F = 3/2$ (isotope 201)	$\frac{28}{125}$	$\frac{\tau}{1 - \frac{28}{125} x_{3/2,3/2}(N)}$	$x_{3/2,3/2}(N) = x_p\left(\frac{N}{3}\right)$
$I = 3/2$ $F = 5/2$ (isotope 201)	$\frac{49}{250}$	$\frac{\tau}{1 - \frac{49}{250} x_{3/2,5/2}(N)}$	$x_{3/2,5/2}(N) = x_p\left(\frac{N}{2}\right)$

TABEAU 2

	$P_\sigma/100$	$P_\pi/100$
$I = 0$ $F = J = 1$ (isotopes pairs)	$\frac{1-x}{1-(3x/5)}$	$\frac{1-x}{1-(4x/5)}$
$I = 1/2$ $F = 3/2$ (isotope 199)	$\frac{3}{7} \times \frac{1-x}{1-(9x/35)}$	$\frac{3}{5} \times \frac{1-x}{1-(12x/25)}$
$I = 1/2$ $F = 3/2$ et $F = 1/2$ excitation broad line (isotope 199)	$\frac{3}{11} \times \frac{1-x}{1-(16x/55)}$	$\frac{3}{7} \times \frac{1-x}{1-(31x/70)}$
$I = 3/2$ $F = 3/2$ (isotope 201)	$\frac{6}{23} \times \frac{1-x}{1-(18x/115)}$	$\frac{12}{29} \times \frac{1-x}{1-(48x/145)}$
$I = 3/2$ $F = 5/2$ (isotope 201)	$\frac{7}{31} \times \frac{1-x}{1-(21x/155)}$	$\frac{7}{19} \times \frac{1-x}{1-(28x/95)}$

mais le paramètre T , durée de cohérence du niveau dans les conditions de géométrie fixées. Aux très basses pressions de vapeur, N étant très petit, $x \rightarrow 0$ et $T \rightarrow \tau$. $T > \tau$ dès que x est non nul. Ainsi, la méthode de la résonance magnétique de Brossel [4], ou celle de la dépolarisation magnétique due à Hanle [5], [6] et utilisée par divers auteurs dans le cas du mercure [7], [8] permettent, dans les mêmes conditions, de mesurer la même durée de cohérence. La forme des raies de résonance magnétique doit être la même qu'en l'absence de diffusion multiple ; de même la variation du taux de polarisation dans la méthode de Hanle doit suivre la loi classique démontrée par Weisskopf et Breit [5] :

$$P = \frac{P_0}{1 + 4\omega_0^2 T^2}.$$

Les formules théoriques restent les mêmes, seule la grandeur τ est remplacée par T . Le tableau 1 donne les valeurs de α et de T dans les divers cas intéressants, ainsi que l'expression de $x_{I,F}(N)$ correspondant aux valeurs I et F des moments angulaires en fonction de $x_{0,1}(N) = x_p(N)$ correspondant aux isotopes pairs (relation tirée de (II,16) et (II,13)). Il est à remarquer que, même lorsque la diffusion multiple devient très importante (x voisin de 1), T ne tend que vers une limite finie.

Le temps d'emprisonnement du rayonnement est également facile à déterminer dans notre formalisme ; la probabilité totale de trouver un atome excité à l'instant t , sachant qu'un atome était excité à l'instant 0, est $P(t) = \text{Trace } \rho(t) = e^{-\Gamma(1-x)t}$ puisque $\text{trace } \rho(0) = 1$

$$P(t) = e^{-t/\tau'} \quad \text{où} \quad \tau' = \frac{\tau}{1-x} \quad (\text{II,23})$$

est le temps d'emprisonnement.

Comme $\alpha < 1$, on constate que $\tau' > T$, conclusion en accord avec les résultats des mesures de τ' par différents auteurs [9] et nos résultats de mesure de T . τ' tend vers l'infini quand x tend vers 1, c'est-à-dire quand les photons ne peuvent plus sortir de la cellule.

En ce qui concerne les valeurs des taux de polarisation P_σ et P_π enfin, si on se trouve en champ fort et en l'absence de radiofréquence, la matrice $\mathcal{H}$ est diagonale, ainsi que $\rho(0)$, si bien que

$$\rho(t) = e^{-\Gamma(1-\alpha)t} \left[\rho(0) - \frac{\text{II}}{2F+1} \right] + \frac{e^{-\Gamma(1-x)t}}{2F+1} \text{II}. \quad (\text{II,24})$$

Ainsi, la répartition de populations donnée en l'absence de diffusion multiple par $e^{-\Gamma t} \rho(0)$ est remplacée par celle donnée par $\rho(t)$. On en déduit facilement dans les divers cas possibles les valeurs de P_σ et P_π en fonction de x . Les résultats sont donnés par le tableau 2.

Dans tous les cas, P_σ et P_π sont inférieurs aux valeurs obtenues pour $x = 0$ (absence de diffusion multiple) et tendent vers 0 quand x tend vers 1.

Ainsi se trouvent justifiés les résultats qualitatifs décrits antérieurement [3]. L'accord quantitatif entre les prévisions théoriques et l'expérience sera examiné dans la 3^e partie.

REMARQUE. — Les résultats précédents permettent également de prévoir théoriquement les résultats obtenus en isolant les photons diffusés $p+1$ fois. Il suffit de calculer les intensités lumineuses correspondant à la matrice densité (II,18). En particulier, dans le cas de la diffusion double, $p = 1$ et l'on a la matrice densité

$$\rho^{(2)}(t) = x \Gamma e^{-\Gamma t} e^{-i\mathcal{H}t} \left[\alpha \rho(0) + \frac{1-\alpha}{2F+1} \text{II} \right] e^{i\mathcal{H}t}$$

dont la partie variable avec le champ de haute fréquence dans le cas de la résonance magnétique est

$$\begin{aligned} \rho^{(2)}(t) &= \alpha x \Gamma e^{-\Gamma t} e^{-i\mathcal{H}t} \rho(0) e^{i\mathcal{H}t} \\ &= -\alpha x \Gamma \frac{\partial}{\partial F} \rho^{(1)}(t). \quad (\text{II,25}) \end{aligned}$$

Il en résulte que la forme de la raie de résonance magnétique observée dans le cas de la diffusion double isolée est proportionnelle à

$$-\Gamma^2 \frac{\partial}{\partial F} \left[\frac{1}{\Gamma} B(\Omega, \gamma H_1, \frac{1}{\Gamma}) \right] = B^{(2)} \left(\Omega, \gamma H_1, \frac{1}{\Gamma} \right) \quad (\text{II,26})$$

$B \left(\Omega, \gamma H_1, \frac{1}{\Gamma} \right)$ représentant la forme de la raie dans le cas de la diffusion simple. On sait que [3], [4] en posant $\Omega = \omega - \omega_0$

$$\begin{aligned} B \left(\Omega, \gamma H_1, \frac{1}{\Gamma} \right) \\ = \frac{(\gamma H_1)^2 [\Gamma^2 + (\gamma H_1)^2 + 4\Omega^2]}{(\Gamma^2 + 4(\gamma H_1)^2 + 4\Omega^2) (\Gamma^2 + (\gamma H_1)^2 + \Omega^2)}. \quad (\text{II,27}) \end{aligned}$$

On trouve en particulier que la largeur $\Delta\omega$ de la forme $B^{(2)}$ est donnée par :

$$\Delta\omega^2 \sim 0,46 \times \frac{4}{\tau^2} (1 + 11,77 \rho^2) \quad (\text{II,28})$$

alors que l'amplitude à résonance est telle que

$$\frac{H_1^2}{B^{(2)} \left(0, \gamma H_1, \frac{1}{\Gamma} \right)} = \frac{K(4\rho^2 + 1)^2}{4\rho^2 + 3}, \quad (\text{II,29})$$

K étant une constante (avec $\rho = \gamma H_1 \tau = \frac{\gamma H_1}{\Gamma}$).

4. Étude de la validité des hypothèses faites. —

Au cours de cette étude, nous avons fait un certain nombre d'approximations que l'on peut ranger en quatre groupes. Nous allons maintenant discuter leur validité, en particulier si on applique nos résultats au cas des différents isotopes du mercure.

) Certaines approximations concernent les ordres de grandeur des fréquences et intervalles énergétiques. Nous avons supposé que k_0 est une fréquence optique, de l'ordre de 10^{14} à 10^{15} sec $^{-1}$ ($k_0 = 2,48 \cdot 10^{15}$ sec $^{-1}$ pour la raie 2 537 Å du mercure). k_0 est donc effectivement très grand devant toutes les fréquences qui interviennent, de l'ordre au plus de quelques milliers de Mégahertz. Nous avons supposé en outre que les intervalles de structure hyperfine sont grands devant la largeur Doppler des composantes de la raie, celle-ci étant elle-même très supérieure à l'effet Zeeman ; c'est ce qui correspond aux conditions de nos expériences sur le mercure. Mais cette approximation ne serait pas valable dans d'autres cas, comme celui du sodium.

— b) Nous avons fait une approximation non relativiste (I, paragraphe 2, A) entièrement justifiée puisque les vitesses quadratiques moyennes sont de l'ordre de 10^4 cm/sec.

— c) Si R représente la distance entre 2 atomes, nous avons supposé que

$$\begin{cases} k_0 R \gg 1 \\ \omega_0 R, \quad \omega_f R, \quad \omega R, \quad \varepsilon R, \quad \Gamma R \ll 1. \end{cases}$$

La 2^e série d'hypothèses revient à dire que la distance entre deux atomes est toujours très petite devant les longueurs d'onde associées aux fréquences $\omega_0, \omega_f, \omega, \varepsilon, \Gamma$. Celles-ci sont de l'ordre de plusieurs mètres, ou dizaines de mètres, alors que les dimensions des cellules de résonance utilisées ne sont que de quelques centimètres. L'approximation est donc parfaitement valable.

L'hypothèse $k_0 R \gg 1$ implique $R \gg 4 \cdot 10^{-6}$ cm. Le nombre d'atomes se trouvant à une distance d'un atome déterminé inférieure à $4 \cdot 10^{-6}$ cm est

$$\frac{4}{3} \pi (4 \cdot 10^{-6})^3 N \sim 3 \cdot 10^{-16} N.$$

Dans le domaine de pressions de vapeur exploré ($N \leq 2 \cdot 10^{13}$ atomes par cm 3), 1 atome sur 150 en moyenne se trouve dans une sphère de rayon $4 \cdot 10^{-6}$ cm centrée sur un autre. Cette approximation est donc encore justifiée.

— d) Enfin, nous avons admis que

$$|\mathbf{v}_{12} t| \ll |\mathbf{R}_{12}| \quad (\text{I,42})$$

pour des temps t de l'ordre de τ . Cette condition est la plus restrictive. Pour $\tau \sim 1,2 \cdot 10^{-7}$ sec, si $|\mathbf{V}_{12}| \sim 2 \cdot 10^4$ cm/s, elle correspondrait à $|\mathbf{R}_{12}| \gg 2,5 \cdot 10^{-3}$ cm, ce qui exclurait un nombre important d'atomes situés autour d'un autre. Toutefois, notons que la pénétration du rayonnement autour d'un atome se fait dans une sphère dont le rayon est de l'ordre de $1/KN \sim 1/(2 \cdot 10^{-13} N)$ cm. Il en résulte que la fraction d'atomes pour lesquels

l'approximation n'est pas valable est au plus de l'ordre de

$$\left(\frac{2,5 \cdot 10^{-3}}{1/(2 \cdot 10^{-13} N)} \right)^3 \sim (5 \cdot 10^{-16} N)^3.$$

En réalité, cette fraction est plus petite encore ; en effet, il est clair que si a_{12} est très différent d'une valeur du type $\Delta m \omega_0 + \Delta \mu \omega_f$ (Δm et $\Delta \mu$ étant des entiers algébriques), c'est-à-dire que si l'effet Doppler ne permet pas le passage du photon de l'atome 1 à l'atome 2 avec conservation de l'énergie, ce passage est très peu probable, et c'est le résultat que donne aussi notre calcul. Il risque donc seulement d'être très inexact pour les atomes 2 tels que a_{12} ait une valeur de ce type, dans les limites de la largeur naturelle Γ des niveaux. Le nombre d'atomes 2 satisfaisant à cette condition est plus petit que le nombre total d'atomes 2 par un facteur de l'ordre de $k_0 v / \Gamma \sim 2 \cdot 10^3$ pour chaque valeur de a_{12} possible. Il en résulte que la fraction d'atomes négligés ne dépasse pas $10^{-2} (5 \cdot 10^{-16} N)^3$ ce qui reste très petit.

APPENDICE N° 1

Moyennes sur les vitesses des différents atomes.

— Nous admettrons pour simplifier que tous les atomes sont animés de la même vitesse v , que nous prendrons égale à la vitesse quadratique moyenne. Nous appellerons dans la suite d'atomes 1, 2 ... p d'un chemin C , ψ_r et ψ'_r les angles de $\mathbf{v}_r$ avec les droites joignant les atomes $r-1$ et r , r et $r+1$ respectivement. On a par définition :

$$a_{r,r+1} = k_0 v (\cos \psi_{r+1} - \cos \psi'_r). \quad (\text{A1,1})$$

Si on intègre successivement sur les vitesses des atomes $p, p-1, \dots$, on effectue la 1^{re} intégration sur $a_{p-1,p}$, les autres coefficients a étant fixes. On a alors

$$da_{p-1,p} = -k_0 v \sin \psi_p d\psi_p$$

et on doit intégrer sur toutes les valeurs possibles de ψ_p , avec le poids

$$\frac{1}{2} \sin \psi_p d\psi_p = -\frac{1}{2k_0 v} da_{p-1,p}.$$

Les limites d'intégration sont données par

$$k v (\mp 1 - \cos \psi'_{p-1}), \quad (\text{A1,1})$$

c'est-à-dire

$$-2k_0 v \cos^2 \frac{\psi'_{p-1}}{2} \quad \text{et} \quad 2k_0 v \sin^2 \frac{\psi'_{p-1}}{2}.$$

Or $k_0 v$ est grand devant Γ c'est-à-dire devant l'inverse des temps t qui interviennent pratiquement. $a_{p-1,p}$ ne figure que dans les exponentielles du type $e^{ia_{p-1,p}t}$. Il est donc possible de remplacer

les limites d'intégration par $\mp \infty$ sans commettre une grosse erreur. L'intégrale à faire est donc

$$\frac{1}{2k_0 v} \int_{-\infty}^{+\infty} da_{p-1,p}.$$

Elle est devenue indépendante des valeurs des autres paramètres a et ψ . La moyenne à faire sur les vitesses reviendra donc à calculer l'intégrale $\frac{1}{(2k_0 v)^p} \iint \dots \int da_{01} da_{12} \dots da_{p-1,p}$ du résultat.

Dans le cas particulier d'un chemin C' , il n'y a pas à intégrer sur a_{qB} , puisque les atomes sont pratiquement alignés et que par suite a_{qB} est lié aux autres a par

$$a_{qB} = a_{1B} - (a_{A1} + a_{12} + \dots + a_{q-1,q}).$$

APPENDICE N° 2

Calcul de l'expression (II, 30). — Nous ferons tout d'abord la moyenne sur les valeurs des paramètres $\mu_1, \mu_2 \dots \mu_q$. Chaque valeur étant également probable, nous devons calculer

$$\frac{1}{(2I+1)^q} \sum_{\mu_1 \dots \mu_q} \mathcal{O}(q, \mu_q; B, \mu_B; t') \mathcal{O}(q-1, \mu_{q-1}; q, \mu_q; t') \dots \mathcal{O}(A, \mu_A; 1, \mu_1; t'). \quad (\text{A2, 1})$$

Commençons par évaluer

$$\frac{1}{2I+1} \sum_{\mu_1} \mathcal{O}(1, \mu_1; 2, \mu_2; t') \mathcal{O}(A, \mu_A; 1, \mu_1; t'). \quad (\text{A2, 2})$$

D'après les définitions (II,7) et (I,48), (A2, 2) s'écrit

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2I+1} \sum_{\mu_1} \left[e^{iF_z \omega t'} \sum_{\lambda} (\mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D}) e^{-iI_z \omega_f t'} | \mu_2 \rangle \right. \\ & \quad \left. < \mu_1 | e^{iI_z \omega_f t'} (\mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D}) e^{-iF_z \omega t'} \right] \\ & \times \left[e^{iF_z \omega t'} \sum_{\lambda'} (\mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D}) e^{-iI_z \omega_f t'} | \mu_1 \rangle \right. \\ & \quad \left. < \mu_A | e^{iI_z \omega_f t'} (\mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D}) e^{-iF_z \omega t'} \right] \\ & = \frac{1}{2I+1} \sum_{\substack{\mu_1 \\ m_1 m_A}} e^{iF_z \omega t'} | m_2 \rangle \\ & \quad \left[\sum_{\lambda} < m_2 | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | \mu_2 \rangle < \mu_1 | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | m_1 \rangle \right] \\ & \times \left[\sum_{\lambda'} < m_1 | \mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} | \mu_1 \rangle < \mu_A | \mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} | m_A \rangle \right] \\ & \quad \times < m_A | e^{-iF_z \omega t'} e^{i(\mu_A - \mu_1) \omega_f t'} \rangle. \quad (\text{A2, 3}) \end{aligned}$$

Les vecteurs $\mathbf{u}_{\lambda}$ et $\mathbf{u}_{\lambda'}$ sont naturellement supposés tels que les atomes $A, 1$ et 2 soient alignés, c'est-à-dire qu'ils correspondent à un photon dont le vecteur d'onde $\mathbf{k}$ a la direction de la droite AB . Dans ce qui suit, nous définirons tout vecteur $\mathbf{V}$

par ses composantes $V^{(1)}, V^{(0)}, V^{(-1)}$, telles que

$$\mathbf{V} = -V^{(1)} \left(\frac{\xi - i\eta}{\sqrt{2}} \right) + V^{(0)} \zeta + V^{(-1)} \left(\frac{\xi + i\eta}{\sqrt{2}} \right). \quad (\text{A2, 4})$$

Il est facile de voir que pour 2 vecteurs $\mathbf{U}$ et $\mathbf{V}$:

$$\mathbf{U} \cdot \mathbf{V} = \sum_q (-1)^q U^{(q)} V^{(-q)}. \quad (\text{A2, 5})$$

D'autre part les relations (I,14) et (I,16) s'écrivent alors:

$$\begin{cases} [< m | \mathbf{D} | \mu >]^{(q)} \\ = C_{1I}(F, m; m - \mu, \mu) \delta_{m-\mu, q} = C_{1I}(F, m; q, \mu) \\ [< \mu | \mathbf{D} | m >]^{(q)} = (-1)^q [< m | \mathbf{D} | \mu >]^{(-q)} \\ = (-1)^q C_{1I}(F, m; -q, \mu). \end{cases} \quad (\text{A2, 6})$$

On trouve alors

$$\begin{aligned} & \sum_{\substack{\mu_1 \mu_2 \\ \lambda \lambda'}} < m_2 | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | \mu_2 \rangle < \mu_1 | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | m_1 \rangle \\ & \quad < m_1 | \mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} | \mu_1 \rangle < \mu_A | \mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D} | m_A \rangle \\ & = \sum_{\substack{\mu_1 \mu_2 \\ \lambda \lambda' \\ q, q', q'', q'''}} (-1)^{q+q''} u_{\lambda}^{(-q)} u_{\lambda}^{(q')} u_{\lambda'}^{(-q')} u_{\lambda'}^{(q'')} \\ & \quad C_{1I}(F, m_2; q, \mu_2) C_{1I}(F, m_1; q'; \mu_1) \\ & \quad C_{1I}(F, m_1; q'', \mu_1) C_{1I}(F, m_A; q''', \mu_A). \quad (\text{A2, 7}) \end{aligned}$$

D'après les relations d'orthogonalité des coefficients de Glebsch-Gordan (cf. Blatt et Weisskopf « Theoretical Nuclear Physics, p. 790).

$$\sum_{\mu_1 m_1} C_{1I}(F, m_1; q', \mu_1) C_{1I}(F, m_1; q'', \mu_1) = \frac{2F+1}{3} \delta_{q'q''}. \quad (\text{A2, 8})$$

L'expression (A2, 7) devient donc:

$$\begin{aligned} & \sum_{\substack{\lambda \lambda' \\ q q' q''}} (-1)^{q+q'} u_{\lambda}^{(-q)} u_{\lambda}^{(q')} u_{\lambda'}^{(-q')} u_{\lambda'}^{(q'')} \times \frac{2F+1}{3} \\ & \quad \times C_{1I}(F, m_2; q, \mu_2) C_{1I}(F, m_A; q''', \mu_A). \end{aligned}$$

Mais étant donné le caractère orthonormé des vecteurs $\mathbf{u}_{\lambda}$:

$$\sum_{q'} (-1)^{q'} u_{\lambda}^{(q')} u_{\lambda'}^{(-q')} = \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{u}_{\lambda'} = \delta_{\lambda \lambda'}$$

et on obtient:

$$\begin{aligned} & \sum_{\lambda q q''} (-1)^q u_{\lambda}^{(-q)} u_{\lambda}^{(q'')} \times \frac{2F+1}{3} \\ & \quad C_{1I}(F, m_2; q, \mu_2) C_{1I}(F, m_A; q''', \mu_A) \\ & = \frac{2F+1}{3} \sum_{\lambda} < m_2 | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | \mu_2 \rangle < \mu_A | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | m_A \rangle. \quad (\text{A2, 9}) \end{aligned}$$

On voit donc que l'expression (A2, 3) n'est autre que

$$\frac{2F+1}{3(2I+1)} \sum_{\substack{m_2 \\ m_A}} e^{iF_z \omega t'} |m_2\rangle$$

$$\left[\sum_{\lambda} \langle m_2 | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | \mu_2 \rangle \langle \mu_A | \mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D} | m_A \rangle \right] \\ \times \langle m_A | e^{-iF_z \omega t'} e^{i(\mu_A - \mu_2) \omega t'} \rangle$$

et par suite

$$\frac{1}{2I+1} \sum_{\mu_1} \mathcal{O}(1, \mu_1; 2, \mu_2; t') \mathcal{O}(A, \mu_A; 1, \mu_1; t') \\ = \frac{2F+1}{3(2I+1)} \mathcal{O}(A, \mu_A; 2, \mu_2; t'). \quad (\text{A2}, 10)$$

Par récurrence, on montre ainsi que l'expression (A2, 1) se réduit à

$$\left[\frac{2F+1}{3(2I+1)} \right]^q \mathcal{O}(A, \mu_A; B, \mu'_B; t').$$

APPENDICE N° 3

Calcul de $\rho' = \sum_{\mu_1 \mu_0 \text{ angles de } \mathbf{R}_{01}} \sum e^{i\mathcal{D}_t} \mathcal{O}(0, \mu_0; 1, \mu_1; t) \\ e^{-i\mathcal{D}_t} \rho(0) e^{i\mathcal{D}_t} \mathcal{O}^*(0, \mu_0; 1, \mu_1; t) e^{-i\mathcal{D}_t}.$

Ce calcul permet de passer de l'expression (II,17) à l'expression (II,18). Il comporte les étapes suivantes :

1) Évaluation de $\rho(0)$ dans les cas intéressants en pratique.

2) Intégration sur les angles polaires du vecteur $\mathbf{R}_{01} - \rho'$ est alors exprimé sous la forme d'une somme de 3 termes, $\rho'_1, \rho'_2, \rho'_3$.

3) Évaluation du terme ρ'_3 .

4) Réduction des termes ρ'_1 et ρ'_2 .

5) Exposé de la méthode de calcul de ρ'_1 .

6) Calcul effectif de ρ'_1 .

1) EXPRESSION DE $\rho(0)$. — a) Dans le cas où l'effet Zeeman est grand devant la largeur naturelle des niveaux et la largeur en fréquence des trains d'onde excitateurs, on peut montrer (cf. réf. 10, appendice n° 1) que l'on peut prendre :

$$\langle m | \rho(0) | m' \rangle \\ = K \delta_{mm'} \sum_{\mu} \langle m | \mathbf{e}_{\lambda}^0 \cdot \mathbf{D} | \mu \rangle \langle \mu | \mathbf{e}_{\lambda}^0 \cdot \mathbf{D} | m \rangle \quad (\text{A3}, 1)$$

— $\mathbf{e}_{\lambda}^0$ étant le vecteur électrique de la lumière excitatrice (normé à l'unité). Nous faisons l'hypothèse d'une excitation, soit en lumière de polarisation linéaire, soit en lumière naturelle. Dans ce dernier cas, il suffit d'ajouter 2 expressions telles que (A3, 1) correspondant à 2 états de polarisation rectangulaires, les trains d'onde correspondants étant incohérents entre eux ; K est une constante de normalisation telle que $\text{Trace } \rho(0) = 1$.

On peut écrire (cf. appendice n° 2) :

$$\langle m | \rho(0) | m' \rangle \\ = K \delta_{mm'} \sum_{qq'\mu} (-1)^q e_{\lambda}^{0(-q)} e_{\lambda}^{0(q')} \\ C_{1I}(F, m; q, \mu) C_{1I}(F, m; q', \mu).$$

$$= K \delta_{mm'} \sum_{\mu} (-1)^{m-\mu} e_{\lambda}^{0(\mu-m)} e_{\lambda}^{0(m-\mu)} \\ |C_{1I}(F, m; m-\mu, \mu)|^2 \quad (\text{A3}, 2)$$

$\mathbf{e}_{\lambda}^0$ est un vecteur réel pour lequel

$$e_{\lambda}^{0(q)} = (-1)^q [e_{\lambda}^{0(-q)}]^*.$$

Si bien que

$$\langle m | \rho(0) | m' \rangle \\ = K \delta_{mm'} \left\{ |e_{\lambda}^{0(1)}|^2 |C_{1I}(F, m; 1, m-1)|^2 \right. \\ \left. + |C_{1I}(F, m; -1, m+1)|^2 \right. \\ \left. + |e_{\lambda}^{0(0)}|^2 |C_{1I}(F, m; 0, m)|^2 \right\} \quad (\text{A3}, 3)$$

ou, d'après les propriétés des coefficients de Glebsch-Gordan :

$$\langle m | \rho(0) | m' \rangle \\ = K \delta_{mm'} \left\{ [|e_{\lambda}^{0(1)}|^2 - |e_{\lambda}^{0(0)}|^2] |C_{1I}(F, m; 1, m-1)|^2 \right. \\ \left. + |C_{1I}(F, m; -1, m+1)|^2 + |e_{\lambda}^{0(0)}|^2 \right\} \\ = K \delta_{mm'} \left\{ [|e_{\lambda}^{0(1)}|^2 - |e_{\lambda}^{0(0)}|^2] \right. \\ \left. \langle m | J_z^2 | m \rangle + |e_{\lambda}^{0(0)}|^2 \right\}.$$

Cette dernière relation est obtenue grâce à (I,15). On en tire :

$$\rho(0) = K \left\{ [|e_{\lambda}^{0(1)}|^2 - |e_{\lambda}^{0(0)}|^2] J_z^2 + |e_{\lambda}^{0(0)}|^2 \Pi \right\} \\ = \left\{ [|e_{\lambda}^{0(1)}|^2 - |e_{\lambda}^{0(0)}|^2] \left[J_z^2 - \frac{2}{3} \Pi \right] + \frac{1}{3} \Pi \right\}. \quad (\text{A3}, 4)$$

b) Dans le cas où l'effet Zeeman est de l'ordre de Γ , on montre (réf. 10, appendice n° 1) que

$$\langle m | \rho(0) | m' \rangle \\ = K \sum_{\mu} \langle m | \mathbf{e}_{\lambda}^0 \cdot \mathbf{D} | \mu \rangle \langle \mu | \mathbf{e}_{\lambda}^0 \cdot \mathbf{D} | m' \rangle.$$

Si i, j, k représentent les indices x, y, z , on trouve :

$$\langle m | \rho(0) | m' \rangle \\ = K \sum_{i,j,\mu} (e_{\lambda}^0)_i (e_{\lambda}^0)_j \langle m | D_i | \mu \rangle \langle \mu | D_j | m' \rangle \\ = \frac{1}{2} K \sum_{ij} (e_{\lambda}^0)_i (e_{\lambda}^0)_j \sum_{\mu} \left[\langle m | D_i | \mu \rangle \langle \mu | D_j | m' \rangle \right. \\ \left. + \langle m | D_j | \mu \rangle \langle \mu | D_i | m' \rangle \right. \\ \left. - \frac{2}{3} \delta_{ij} \sum_k \langle m | D_k | \mu \rangle \langle \mu | D_k | m' \rangle \right] \\ + \frac{1}{3} K \sum_{ijk\mu} \delta_{ij} (e_{\lambda}^0)_i (e_{\lambda}^0)_j \langle m | D_k | \mu \rangle \langle \mu | D_k | m' \rangle. \quad (\text{A3}, 5)$$

Le dernier terme s'écrit

$$|e_{\lambda}^0|^2 |C_{1I}(F, m; q, \mu)|^2 \quad \frac{1}{3}.$$

D'où il résulte que

$$\begin{aligned} \rho(0) &= \frac{1}{2} K \sum_{ij} (e_{\lambda}^0)_i (e_{\lambda}^0)_j \\ &\times \sum_{\mu} [D_i |\mu\rangle \langle \mu| D_j + D_j |\mu\rangle \langle \mu| D_i \\ &- \frac{2}{3} \delta_{ij} \sum_k D_k |\mu\rangle \langle \mu| D_k] + \frac{1}{3} K \text{II}. \quad (\text{A3, 6}) \end{aligned}$$

Les 2 expressions (A3, 4) et (A3, 6) montrent que dans tous les cas $\rho(0)$ s'exprime sous la forme d'une somme d'opérateurs dont chacun est soit la composante ij d'un opérateur tensoriel T_{ij} du second rang, symétrique, et tel que $\sum_i T_{ii} = 0$, soit un scalaire.

En vertu d'un théorème général sur les opérateurs tensoriels, il en résulte que $\rho(0)$ a la forme

$$\rho(0) = \sum_{ij} a_{ij} \left[\frac{1}{2} (F_i F_j + F_j F_i) - \frac{1}{3} \delta_{ij} F^2 \right] + \frac{1}{2 F^2 + 1} \text{II} \quad (\text{A3, 7})$$

les a_{ij} sont des coefficients qui dépendent du mode d'excitation et le coefficient de II est tel que $\text{Trace } \rho(0) = 1$.

Il résulte de cette expression de $\rho(0)$ que

$$\begin{aligned} \langle -m' | \rho(0) | -m \rangle &= (-1)^{m-m'} \langle m | [\rho(0)]^* | m' \rangle \\ &= (-1)^{m-m'} \langle m | \rho(0) | m' \rangle. \quad (\text{A3, 8}) \end{aligned}$$

La propriété représentée par la 1^{re} égalité est vraie en effet pour les opérateurs iF_i , pour leurs produits $(iF_i)(iF_j) = -F_i F_j$ et enfin pour $\rho(0)$.

2) INTÉGRATION SUR LES ANGLES POLAIRES DE $\mathbf{R}_{01}$. — D'après la définition des opérateurs $\mathcal{O}$, (I, 48) et (II, 7)

$$\begin{aligned} e^{i\partial\mathcal{C}t} \mathcal{O}(0, \mu_0; 1, \mu_1; t) e^{-i\partial\mathcal{C}t} \rho(0) e^{i\partial\mathcal{C}t} \mathcal{O}^*(0, \mu_0; 1, \mu_1; t) \\ e^{-i\partial\mathcal{C}t} = e^{i\partial\mathcal{C}t} e^{iF_z \omega t} \left\{ \sum_{\lambda} (\mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D}) |\mu_1\rangle \right. \\ \left. \langle \mu_0 | (\mathbf{u}_{\lambda} \cdot \mathbf{D}) \tilde{\rho}(t) \sum_{\lambda'} (\mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D}) | \mu_0 \rangle \langle \mu_1 | (\mathbf{u}_{\lambda'} \cdot \mathbf{D}) \right\} \\ e^{-iF_z \omega t} e^{-i\partial\mathcal{C}t} \quad (\text{A3, 9}) \end{aligned}$$

en posant

$$\tilde{\rho}(t) = e^{-iF_z \omega t} e^{-i\partial\mathcal{C}t} (\rho(0) e^{i\partial\mathcal{C}t} e^{iF_z \omega t}). \quad (\text{A3, 10})$$

Seule la partie entre accolades de l'expression (A3, 9) dépend des angles. Son élément de matrice $\langle m |, | m' \rangle$ est :

$$\begin{aligned} \sum_{\substack{\lambda\lambda' \\ m''m''' \\ ijkl}} u_{\lambda i} u_{\lambda j} u_{\lambda' k} u_{\lambda' l} \langle m | D_i | \mu_1 \rangle \langle \mu_0 | D_j | m'' \rangle \\ \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \langle m''' | D_k | \mu_0 \rangle \langle \mu_1 | D_l | m' \rangle. \end{aligned}$$

Complétons les vecteurs $\mathbf{u}_1$ et $\mathbf{u}_2$ par un vec-

teur $\mathbf{u}_3 = \mathbf{u}_1 \wedge \mathbf{u}_2$. On voit aisément que

$$\sum_{\lambda, \lambda'} u_{\lambda i} u_{\lambda j} u_{\lambda' k} u_{\lambda' l} = (\delta_{ij} - u_{3i} u_{3j}) (\delta_{kl} - u_{3k} u_{3l})$$

et l'intégrale sur les angles polaires de $\frac{\mathbf{R}_{01}}{R_{01}} = -\mathbf{u}_3$ de cette expression est

$$\begin{aligned} 4\pi \left[\delta_{ij} \delta_{kl} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \delta_{kl} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \delta_{kl} + \frac{1}{5} \delta_{ij} \delta_{jk} \delta_{kl} \right. \\ \left. + \frac{1}{15} \delta_{ii(i \neq k)} \delta_{kl} + \frac{1}{15} \delta_{ik(i \neq j)} \delta_{jl} + \frac{1}{15} \delta_{il(i \neq j)} \delta_{jk} \right] \\ = \frac{4\pi}{15} [6\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}]. \quad (\text{A3, 11}) \end{aligned}$$

Ainsi l'élément de matrice cherché est, après sommation sur les angles polaires de $\mathbf{R}_{01}$:

$$\begin{aligned} \frac{8\pi}{5} \sum_{m''m'''} \langle m | D_i | \mu_1 \rangle \langle \mu_0 | D_i | m'' \rangle \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \\ \langle m''' | D_j | \mu_0 \rangle \langle \mu_1 | D_j | m' \rangle \\ + \frac{4\pi}{15} \sum_{m''m'''} \langle m | D_i | \mu_1 \rangle \langle \mu_0 | D_j | m'' \rangle \\ \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \langle m''' | D_i | \mu_0 \rangle \langle \mu_1 | D_j | m' \rangle \\ + \frac{4\pi}{15} \sum_{m''m'''} \langle m | D_i | \mu_1 \rangle \langle \mu_0 | D_j | m'' \rangle \\ \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \langle m''' | D_j | \mu_0 \rangle \langle \mu_1 | D_i | m' \rangle. \quad (\text{A3, 12}) \end{aligned}$$

Nous appellerons $\rho'_1, \rho'_2, \rho'_3$ les contributions de ces 3 termes à l'expression ρ' .

3) ÉVALUATION DE ρ'_3 . — On a donc

$$\begin{aligned} \rho'_3 = \frac{4\pi}{15} \left\{ e^{i\partial\mathcal{C}t} e^{iF_z \omega t} \left[\sum_{\mu_1} \mathbf{D} | \mu_1 \rangle \langle \mu_1 | \mathbf{D} \right] e^{-iF_z \omega t} e^{-i\partial\mathcal{C}t} \right\} \\ \times \left\{ \sum_{\mu_0} \langle m'' | \mathbf{D} | \mu_0 \rangle \langle \mu_0 | \mathbf{D} | m'' \rangle \right. \\ \left. \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \right\}. \end{aligned}$$

Or

$$\begin{aligned} \sum_{\mu_0} \langle m'' | \mathbf{D} | \mu_0 \rangle \langle \mu_0 | \mathbf{D} | m'' \rangle \\ = \sum_{q\mu_0} C_{1I}(F, m''; q, \mu_0) C_{1I}(F, m''; q, \mu_0) = \delta_{m''m''}. \end{aligned}$$

Donc l'opérateur $\sum_{\mu_0} \mathbf{D} | \mu_0 \rangle \langle \mu_0 | \mathbf{D} = \text{II}$ et il reste

$$\begin{aligned} \rho'_3 = \frac{4\pi}{15} \left\{ e^{i\partial\mathcal{C}t} e^{iF_z \omega t} \text{II} e^{-iF_z \omega t} e^{-i\partial\mathcal{C}t} \right\} \\ \left\{ \text{Trace} [\text{II } \tilde{\rho}(t)] \right\} = \frac{4\pi}{15} \text{II}. \quad (\text{A3, 13}) \end{aligned}$$

4) RÉDUCTION DES TERMES ρ'_1 ET ρ'_2 . — Nous montrerons maintenant que les termes ρ'_1 et ρ'_2

sont semblables. En effet, le terme de (A3, 12) donnant naissance à ρ'_2 est proportionnel à

$$\begin{aligned} & \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0\mu_1 \\ q'q}} \langle m | \mathbf{D} | \mu_1 \rangle \cdot \langle m''' | \mathbf{D} | \mu_0 \rangle \\ & [\langle \mu_0 | \mathbf{D} | m'' \rangle \cdot \langle \mu_1 | \mathbf{D} | m' \rangle] \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \\ & = \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0\mu_1 \\ q'q}} (-1)^{q+q'} C_{1I}(F, m; q, \mu_1) C_{1I}(F, m''; -q, \mu_0) \\ & C_{1I}(F, m''; -q', \mu_0) C_{1I}(F, m'; q', \mu_1) \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle. \end{aligned}$$

Changeant les indices muets m'' , m''' , μ_0 en $-m''$, $-m'''$, $-\mu_0$ respectivement, utilisant la propriété (A3, 8), vraie pour $\tilde{\rho}(t)$ comme pour $\rho(0)$ et les relations de symétrie des coefficients de Glebsch-Gordan, on obtient :

$$\begin{aligned} & \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0\mu_1 \\ q'q}} (-1)^{q+q'} C_{1I}(F, m; q, \mu_1) C_{1I}(F, -m''; -q, -\mu_0) \\ & C_{1I}(F, -m''; -q', -\mu_0) C_{1I}(F, m'; q', \mu_1) \\ & \quad \quad \quad \langle -m'' | \tilde{\rho}(t) | -m''' \rangle \\ & = \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0\mu_1 \\ q'q}} (-1)^{q+q'+2(1+I-F)+m''-m'''} \\ & \quad C_{1I}(F, m; q, \mu_1) C_{1I}(F, m''; q, \mu_0) \\ & \quad C_{1I}(F, m''; q', \mu_0) C_{1I}(F, m'; q', \mu_1) \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle. \end{aligned}$$

Or $I+1-F$ est entier et $2(I+1-F)$ est pair ; d'autre part, les seuls termes non nuls correspondent à

$$m''' = q + \mu_0, \quad m'' = q' + \mu_0,$$

done

$$m'' - m''' = q' - q \quad \text{et} \quad q + q' + m'' - m''' = 2q'$$

qui est pair aussi. On obtient donc :

$$\begin{aligned} & \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0\mu_1 \\ q'q}} C_{1I}(F, m; q, \mu_1) C_{1I}(F, m''; q, \mu_0) \\ & C_{1I}(F, m''; q', \mu_0) C_{1I}(F, m'; q', \mu_1) \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \\ & = \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0\mu_1}} [\langle m | \mathbf{D} | \mu_1 \rangle \cdot \langle \mu_0 | \mathbf{D} | m'' \rangle] \\ & \quad \quad \quad \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle [\langle m'' | \mathbf{D} | \mu_0 \rangle \cdot \langle \mu_1 | \mathbf{D} | m' \rangle] \end{aligned}$$

ce qui est semblable au terme donnant naissance à ρ'_1 . Il en résulte que

$$\rho'_1 + \rho'_2 = \rho'_1 + \frac{1}{6} \rho'_1 = \frac{7}{6} \rho'_1 \quad (\text{A3, 14})$$

et qu'il suffit maintenant de calculer ρ'_1 .

5) MÉTHODE DE CALCUL DE ρ'_1 . — a) *Élimination du temps*. — Nous avons posé

$$\begin{aligned} \rho'_1 &= \frac{8\pi}{5} \sum_{ij} \left\{ \sum_{\mu_1} e^{i\partial\mathcal{L}t} e^{iF_z\omega t} D_i | \mu_1 \rangle \langle \mu_1 | D_i e^{-iF_z\omega t} e^{-i\partial\mathcal{L}t} \right\} \\ & \quad \times \left\{ \sum_{\substack{m''m''' \\ \mu_0}} \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \right. \\ & \quad \quad \quad \left. \langle m''' | D_i | \mu_0 \rangle \langle \mu_0 | D_i | m'' \rangle \right\}. \end{aligned}$$

Nous allons montrer que ce résultat est indépendant de t et peut être calculé par conséquent en faisant $t = 0$. Remarquons que l'opérateur

$$e^{-4F_z\omega t} e^{-i\partial\mathcal{L}t} = R(t)$$

représente une rotation $R(t)$ qui transforme les états $|m\rangle_z$ et $|\mu\rangle_z$ quantifiés par rapport aux axes Oxyz en des états $|m\rangle_z = R(t)|m\rangle_z$ et $|\mu\rangle_z = R(t)|\mu\rangle_z$, correspondant aux mêmes valeurs propres m et μ des composantes de $\mathbf{F}$ et $\mathbf{I}$ respectivement sur un axe OZ, les axes OXYZ étant déduits de Oxyz par la rotation $R(t)$. Nous posons

$$R(t)|\mu_1\rangle = \sum_{\mu'_1} R_{\mu_1\mu'_1}(t)|\mu'_1\rangle \quad (\text{A3, 15})$$

et on aura

$$\begin{aligned} \sum_{\mu_1} R(t)|\mu_1\rangle \langle \mu_1 | R^{-1}(t) \\ &= \sum_{\mu_1\mu'_1\mu''_1} R_{\mu_1\mu'_1}(t) R_{\mu'_1\mu''_1}^*(t) |\mu'_1\rangle \langle \mu''_1| \\ &= \sum_{\mu'_1\mu''_1} \delta_{\mu'_1\mu''_1} |\mu'_1\rangle \langle \mu''_1| = \sum_{\mu_1} |\mu_1\rangle \langle \mu_1|. \quad (\text{A3, 16}) \end{aligned}$$

d'après les propriétés d'orthogonalité des coefficients $R_{\mu_1\mu'_1}(t)$.

Il en résulte que

$$\begin{aligned} \langle m | \rho'_1 | m' \rangle &= \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{ij \\ m''m''' \\ \mu_0\mu_1}} \langle m | R^{-1}(t) D_i R(t) | \mu_1 \rangle \\ & \quad \langle \mu_1 | R^{-1}(t) D_j R(t) | m' \rangle \langle m'' | \tilde{\rho}(t) | m''' \rangle \\ & \quad \langle m''' | D_j R(t) | \mu_0 \rangle \langle \mu_0 | R^{-1}(t) D_i | m'' \rangle \\ &= \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{ij \\ m''m''' \\ \mu_0\mu_1}} \langle m | R^{-1}(t) D_i R(t) | \mu_1 \rangle \\ & \quad \langle \mu_1 | R^{-1}(t) D_j R(t) | m' \rangle \\ & \quad \langle m'' | \rho(0) | m''' \rangle \langle m''' | R^{-1}(t) D_i R(t) | \mu_0 \rangle \\ & \quad \langle \mu_0 | R^{-1}(t) D_j R(t) | m'' \rangle. \quad (\text{A3, 17}) \end{aligned}$$

Or $R^{-1}(t) D_i R(t)$ a les éléments de matrices de la composante i de $\mathbf{D}$ sur les axes Oxyz, entre les états quantifiés sur les axes OXYZ = $R(t)$ Oxyz. Ce sont les mêmes que ceux de la composante i de $\mathbf{D}$ sur les axes OX'Y'Z' = $R^{-1}(t)$ Oxyz, entre états quantifiés sur Oxyz. Or pour tout vecteur $\mathbf{V}$:

$$(V_i)_{X'Y'Z'} = \sum_k C_{ik} V_k$$

où les C_{ik} sont les coefficients d'une matrice unitaire :

$$\sum_i C_{ik} C_{il} = \delta_{kl}.$$

Donc

$$\langle m | R^{-1}(t) D_i R(t) | \mu \rangle = \sum_k C_{ik} \langle m | D_k | \mu \rangle$$

et

$$\begin{aligned} \sum_i < m | R^{-1}(t) D_i R(t) | \mu_1 > < \mu_0 | R^{-1}(t) D_i R(t) | m'' > \\ &= \sum_{ikl} C_{ik} C_{il} < m | D_k | \mu_1 > < \mu_0 | D_l | m'' > \\ &= \sum_{kl} \delta_{kl} < m | D_k | \mu_1 > < \mu_0 | D_l | m'' > \\ &= \sum_k < m | D_k | \mu_1 > < \mu_0 | D_k | m'' >. \end{aligned}$$

Utilisation cette relation dans (A3, 17), on obtient

$$\begin{aligned} < m | \rho'_1 | m' > = \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{kl \\ m''m''' \\ \mu_0\mu_1}} < m | D_k | \mu_1 > < \mu_1 | D_l | m'' > \\ < m'' | \rho(0) | m''' > < m''' | D_l | \mu_0 > < \mu_0 | D_k | m'' >. \end{aligned}$$

Le résultat est bien indépendant de t .

b) *Calcul de ρ'_1 pour $t = 0$.* — Le raisonnement que l'on vient de faire est valable pour une rotation quelconque R . Il en résulte que

$$\begin{aligned} < m | R^{-1} \rho'_1 R | m' > \\ &= \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{ij \\ m''m''' \\ \mu_0\mu_1}} < m | D_i | \mu_1 > < \mu_1 | D_j | m'' > \\ < m'' | R^{-1} \rho(0) R | m''' > < m''' | D_j | \mu_0 > < \mu_0 | D_i | m'' >. \end{aligned} \quad (\text{A3, 18})$$

Si $\rho(0)$ était un scalaire, $R^{-1} \rho(0) R = \rho(0)$ et $R^{-1} \rho'_1 R = \rho'_1$.

Si $\rho(0)$ se transforme dans une rotation comme la composante i, j d'un tenseur, on voit qu'il en est de même de ρ'_1 . Or, ρ'_1 dépend linéairement de $\rho(0)$ et sera la somme des résultats obtenus en remplaçant dans (A3, 18) $\rho(0)$ par chaque terme de (A3, 7). On obtiendra ainsi un terme scalaire et des termes de la forme

$$a'_{ij} \left[\frac{1}{2} (F_i F_j + F_j F_i) - \frac{1}{3} \delta_{ij} F^2 \right];$$

$\frac{a'_{ij}}{a_{ij}}$ sera indépendant de i et j .

Il suffira de chercher sa valeur en prenant par exemple le cas où $i = j = z, m = m' = F$. Le terme $\frac{1}{2F+1} \Pi$ dans (A3, 7) contribue à $< m | \rho'_1 | m' >$ par

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2F+1} \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{\mu_0\mu_1 \\ m''m'''}} [< m | \mathbf{D} | \mu_1 > < \mu_0 | \mathbf{D} | m'' >] \\ &\quad [< m''' | \mathbf{D} | \mu_0 > < \mu_1 | \mathbf{D} | m' >] \delta_{m''m'''} \\ &= \frac{1}{2F+1} \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{q' \\ \mu_0\mu_1m''}} C_{11}(F, m; q, \mu_1) C_{11}(F, m''; q, \mu_0) \\ &\quad C_{11}(F, m''; q', \mu_0) C_{11}(F, m'; q', \mu_1) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{2F+1} \frac{8\pi}{5} \sum_{q'\mu_1} C_{11}(F, m; q, \mu_1) C_{11}(F, m'; q', \mu_1) \\ &\quad < \frac{2F+1}{3} \delta_{qq'} = \frac{8\pi}{15} \delta_{mm'}. \end{aligned}$$

La contribution correspondante à ρ'_1 est donc $\frac{8\pi}{15} \Pi$ et à $\rho'_1 + \rho'_2$ elle est $\frac{28\pi}{45} \Pi$.

Pour les autres termes, le rapport a'_{ij}/a_{ij} sera déterminé par

$$\begin{aligned} \frac{a'_{ij}}{a_{ij}} < F \left[F_z^2 - \frac{1}{3} F^2 \right] F > \\ &= \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{\mu_0\mu_1 \\ m''m'''}} [< F | \mathbf{D} | \mu_1 > < \mu_0 | \mathbf{D} | m'' >] \\ < m'' \left[F_z^2 - \frac{1}{3} F^2 \right] m''' > [< m''' | \mathbf{D} | \mu_0 > < \mu_1 | \mathbf{D} | F >] \\ &= \frac{8\pi}{5} \sum_{\substack{q' \\ \mu_0\mu_1m''}} C_{11}(F, F; q, \mu_1) C_{11}(F, F; q', \mu_1) \\ &\quad C_{11}(F, m''; q, \mu_0) C_{11}(F, m''; q', \mu_0) \left[m''^2 - \frac{F(F+1)}{3} \right]. \end{aligned}$$

D'où :

$$\begin{aligned} \frac{a'_{ij}}{a_{ij}} &= \frac{16\pi}{21} \alpha (2F+1) \quad \text{par définition de } \alpha : \\ \alpha &= \frac{63}{10F(2F-1)(2F+1)} \\ &\quad \times \sum_{\mu m} |C_{11}(F, F; F-\mu, \mu) C_{11}(F, m; F-\mu, m-F+\mu)|^2 \\ &\quad \left[m^2 - \frac{F(F+1)}{3} \right] \quad (\text{A3, 19}) \end{aligned}$$

et finalement :

$$\begin{aligned} \rho'_1 + \rho'_2 &= \frac{7}{6} \left\{ \sum_{ij} \frac{16\pi}{21} (2F+1) a_{ij} \left[\frac{F_i F_j + F_j F_i}{2} - \frac{1}{3} \delta_{ij} F^2 \right] \right\} \\ &\quad + \frac{28\pi}{45} \Pi = \frac{8\pi}{9} (2F+1) \left\{ \rho(0) - \frac{1}{2F+1} \Pi \right\} + \frac{28\pi}{45} \Pi \\ \rho'_1 + \rho'_2 + \rho'_3 &= \frac{8\pi(2F+1)}{9} \\ &\quad \left\{ \rho(0) + \frac{1}{2F+1} \Pi \right\}. \quad (\text{A3, 10}) \end{aligned}$$

Le calcul de l'expression (A3, 19) donne les résultats suivants :

$$\begin{aligned} \text{Si } F = I + 1 \quad \alpha &= \frac{7}{100} \frac{(F+1)(2F+3)}{F(2F-1)} \\ \text{Si } F = I \quad \alpha &= \frac{7}{100} \frac{(2F-1)(2F+3)}{F(F+1)} \\ \text{Si } F = I - 1 \quad \alpha &= \frac{7}{100} \frac{F(2F-1)}{(F+1)(2F+3)}. \end{aligned}$$

- [1] Voir 1^{re} partie.
 [2] SCHIFF (L. I.), *Phys. Rev.*, a) 1956 **103**, 443 ; b) 1956, **104**, 1481.
 [3] GUIOCHON (M. A.), BLAMONT (J. E.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1839 ; *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 99. BLAMONT (J. E.), *Thèse*, Paris, 1957 ; *Ann. Physique*, 1957, **2**, 551.
 [4] BITTER, (F.) et BROSSEL (J.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 308. BROSSEL (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
 [5] WEISSKOPF (V.), *Ann. Physique*, 1931, **9**, 23. BREIT (G.), *Rev. Mod. Physics*, 1933, **5**, 91.
 [6] Voir MITCHELL et ZEMANSKY, "Resonance Radiation and Excited Atoms", ch. 5.
 [7] VON KEUSSLER (V.), *Ann. der Phys.*, 1927, **82**, 793. LENNUIER (R.) et COJAN (J. L.), *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **231**, 1450. LENNUIER (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 2230. OLSON (H. F.), *Phys. Rev.*, 1928, **32**, 443. MROZOWSKI (S.), *Z. Physik*, 1931, **68**, 278.
 [8] BARRAT (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 2785.
 [9] WEBB (H. W.) et MESSENGER (H. A.), *Phys. Rev.*, 1929, **33**, 319. GARRETT (P. H.), *Phys. Rev.*, 1932, **40**, 779. HOLSTEIN (T.), *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 1212. HOLSTEIN (T.), ALPERT (D.) et MCCOUBREY (A. O.) *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1257 ; 1951, **82**, 567 ; 1952, **85**, 985.
 [10] BARRAT (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959, n° du microfilm C. N. R. S. 38. 808.

III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.

Dans les 2 premières parties [1, 2] désignées dans la suite par I et II, nous avons développé une étude théorique des effets de la diffusion multiple des photons de résonance optique. Des résultats expérimentaux partiels concernant la raie $6^1S_0 - 6^3P_1$ (2 537 Å) des différents isotopes du mercure, ont déjà été publiés [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]. Le lecteur trouvera en particulier dans les références [4] et [9] un historique de la question et la description qualitative des effets observés, avec les arguments qui ont permis de les attribuer à la diffusion multiple cohérente des photons. Ce chapitre est destiné à récapituler les faits expérimentaux en les comparant aux prévisions de la théorie établie dans I et II.

1. Conditions des expériences dans le cas du mercure. — La structure hyperfine pour les isotopes impairs à spin nucléaire ^{199}Hg et ^{201}Hg , et le déplacement isotopique des composantes dues aux isotopes pairs de la raie $6^1S_0 - 6^3P_1$, sont tous deux grands devant la largeur Doppler de chaque composante [10]. Par suite, conformément aux hypothèses faites dans les calculs de I et II, la diffusion multiple se produit indépendamment pour chaque composante de la raie [4, 9]. On peut aussi profiter de certaines coïncidences accidentelles entre une composante d'un isotope pair et une composante hyperfine d'un isotope impair pour exciter sélectivement un niveau hyperfin d'un isotope impair, grâce à l'emploi de mélanges isotopiques enrichis en l'un ou l'autre des divers isotopes. Les expériences ont porté :

a) sur les formes et les largeurs des raies de résonance magnétique, dans le cas des isotopes pairs (paragr. 2, 4, 5, 6) et de certains niveaux hyperfins des isotopes impairs (paragr. 7, 8, 9) ;

b) sur la mesure des taux de polarisation P_σ et P_π de la lumière de résonance optique réémise à angle droit du champ magnétique statique H_0 , en excitation σ et π respectivement, dans le cas des isotopes pairs (paragr. 2) ;

c) sur la mesure de la durée de vie apparente du niveau 6^3P_1 par la méthode de dépolarisation magnétique due à Hanle [11] dans le cas des isotopes pairs (paragr. 3) et de l'isotope ^{201}Hg (paragr. 10).

Le dispositif expérimental comportait essentiellement une cellule en quartz dont le queusot, contenant la goutte de mercure, doit être soigneusement thermostaté. L'excitation optique était fournie soit par un arc basse pression alimenté en courant alternatif, soit par des lampes excitées par une décharge haute fréquence et contenant des mélanges isotopiques enrichis en un isotope de mercure. Les champs magnétiques utilisés étaient fournis par une paire de bobines en position d'Helmholtz. Un émetteur à quartz suivi d'un amplificateur débitant dans un circuit accordé fournissait le champ H. F. H_1 que l'on mesurait en valeur relative. Des photomultiplicateurs recevaient les signaux de résonance optique. Le signal de résonance magnétique était étudié en général au moyen de la déviation d'un galvanomètre. Toutefois, dans certaines mesures, nous avons utilisé un dispositif électronique de modulation de la puissance de haute fréquence, et d'amplification sélective avec détection synchrone du signal de résonance magnétique. Les différentes parties de l'appareillage sont semblables à celles des appareillages utilisés par Brossel et Blamont et ont déjà été décrites [4, 5, 9, 12].

2. Résonance magnétique et taux de polarisation dans le cas de l'excitation sélective d'un isotope pair [4, 5, 8, 9]. — Dans le domaine de pression de vapeur qui correspond à un nombre N d'atomes diffusants par cm^3 compris entre 10^{10} et $2 \cdot 10^{13}$ (1), les raies de résonance magnétique obtenues par excitation sélective d'un isotope pair dans un mélange isotopique quelconque ont la forme dite de Majorana-Brossel (formule II,27), ce qui est en

(1) Ces mesures ont été effectuées par M^{lles} M. A. Guiochon et F. Boutron et ont constitué une partie de leurs Diplômes d'Études Supérieures [4, 5].

accord avec les prévisions théoriques, et ceci à toutes les fréquences qui aient été utilisées. Plusieurs réseaux complets de courbes de résonance ont été tracés et comparés à des réseaux théoriques, la fréquence choisie étant 144 MHz. L'accord est excellent. Dans des conditions de géométrie iden-

tiques, la largeur des courbes en niveau de radiofréquence nul permet de déterminer un paramètre T , durée de vie apparente du niveau ou « durée de cohérence » qui est une fonction seulement de N , indépendamment de la présence des autres isotopes. La courbe donnant T en fonction

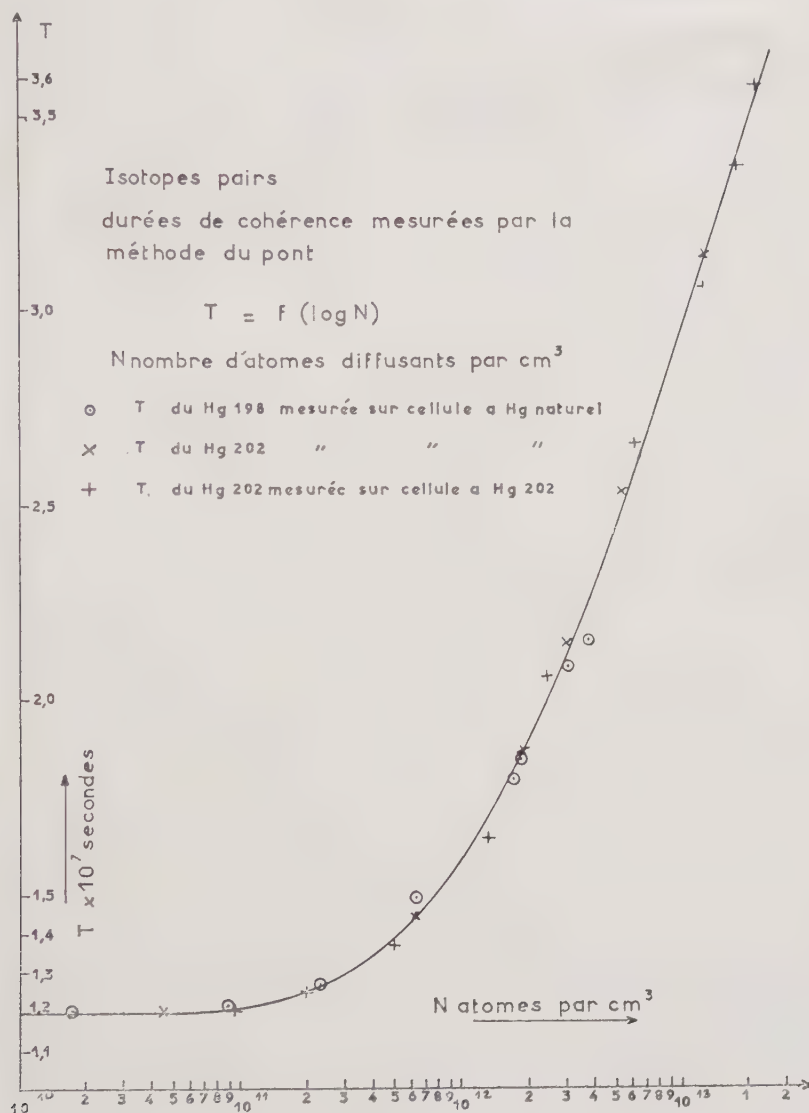


FIG. III, 1.

de N (fig. III, 1) comporte des points obtenus en excitant soit les isotopes ^{202}Hg et ^{198}Hg dans du mercure naturel, soit l'isotope ^{202}Hg dans une cellule contenant ce dernier presque pur. Ce résultat a été l'un des premiers arguments donnés en faveur de l'interprétation de l'affinement des raies par la diffusion multiple [4, 5].

La valeur limite de T pour N très faible, $1,18 \cdot 10^{-7}$ sec, est à interpréter comme la durée de

vie vraie τ du niveau 6^3P_1 pour un atome isolé.

Pour comparer de façon plus précise les prévisions théoriques et les résultats, il est intéressant de tenter de déterminer le paramètre x en fonction de N , ce qui nécessite la fixation de la limite supérieure L (cf. II, paragr. 1, D). Les cellules utilisées étant des cubes de 2,5 cm d'arête environ, le calcul de x , puis de τ/T en fonction de N a été fait pour $L = 1$ cm ou $L = 0,8$ cm (cf. fig. III, 2).

Les résultats encadrent les valeurs expérimentales et ne s'en écartent pas de plus de 20 %. L'accord nous semble satisfaisant étant donné les appro-

ximations faites dans la définition même de x et L . Dans les conditions de nos mesures, les taux de polarisation P_σ et P_π sont aussi des fonctions bien

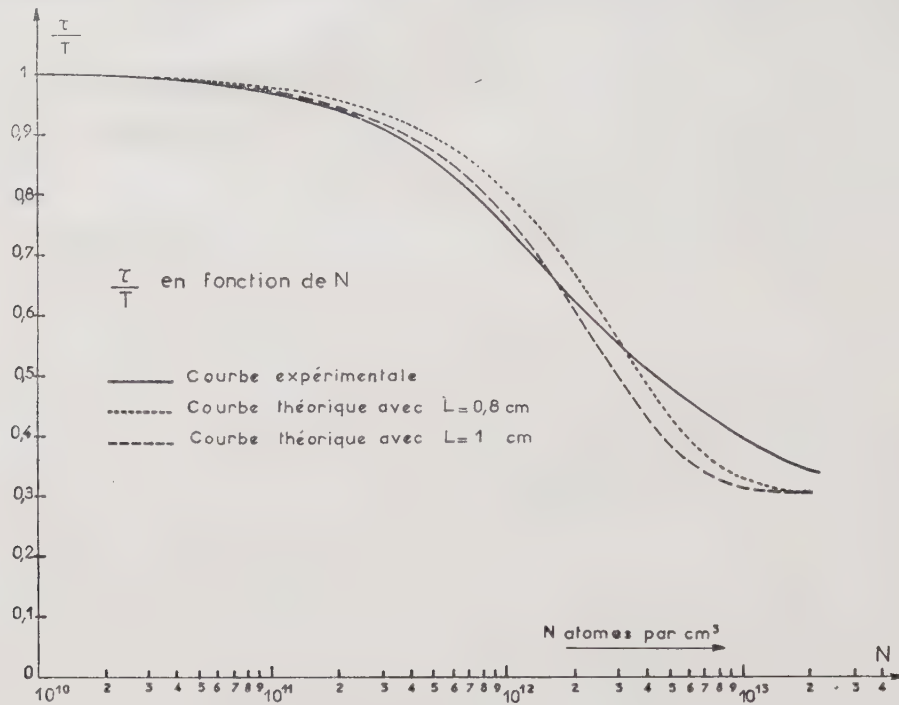


FIG. III,2.

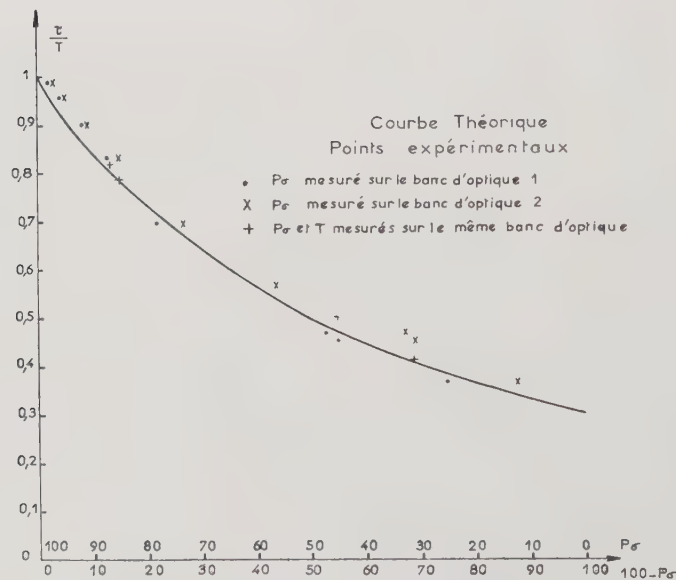


FIG. III,3.

déterminées de N . Il est remarquable toutefois que P_σ et P_π ne semblent pas atteindre leur limite théorique 100 aux très faibles valeurs de N . L'explication de ce phénomène n'a pas été trouvée de façon sûre. Il est dû peut-être au défaut de paral-

lélisme des faisceaux lumineux, ou à la dépolarisation de la lumière par la traversée des fenêtres de la cellule ou par des réflexions et diffusions sur ces fenêtres. S'il s'agit d'un effet de dépolarisation par traversée de dioptres, les valeurs correctes

doivent s'obtenir en effectuant sur les valeurs limites une affinité ramenant à 100 la limite pour N très faible. Ce sont *ces valeurs ainsi corrigées* qui sont comparées plus loin aux valeurs théoriques.

Étant donné les approximations faites dans la définition même du paramètre x , on peut penser que les faibles désaccords entre les résultats théoriques et expérimentaux (cf. fig. III, 2) seront moins importants si on élimine x entre les diverses formules démontrées en II et que l'on essaie de comparer la relation théorique obtenue aux valeurs expérimentales. La courbe de la figure III,3 donne les valeurs théoriques de τ/T en fonction

de P_σ , les points représentant le résultat des mesures ; à une valeur de τ/T déterminée à partir du montage en pont utilisant 2 bancs d'optique (cf. références 4, 5, 9, 12) sont associées 2 valeurs de P_σ mesurées à la même valeur de N sur chacun des 2 bancs d'optique. D'où 2 séries de points expérimentaux. La différence entre ces 2 valeurs de P_σ résulte assurément du fait qu'ils ne visaient pas la même région de la cellule (influence de la géométrie ; cf. paragr. 4) ; on conçoit que les 2 séries de points expérimentaux encadrent presque partout la courbe théorique. Lorsque T a été mesuré en n'utilisant qu'un seul banc d'optique, le point

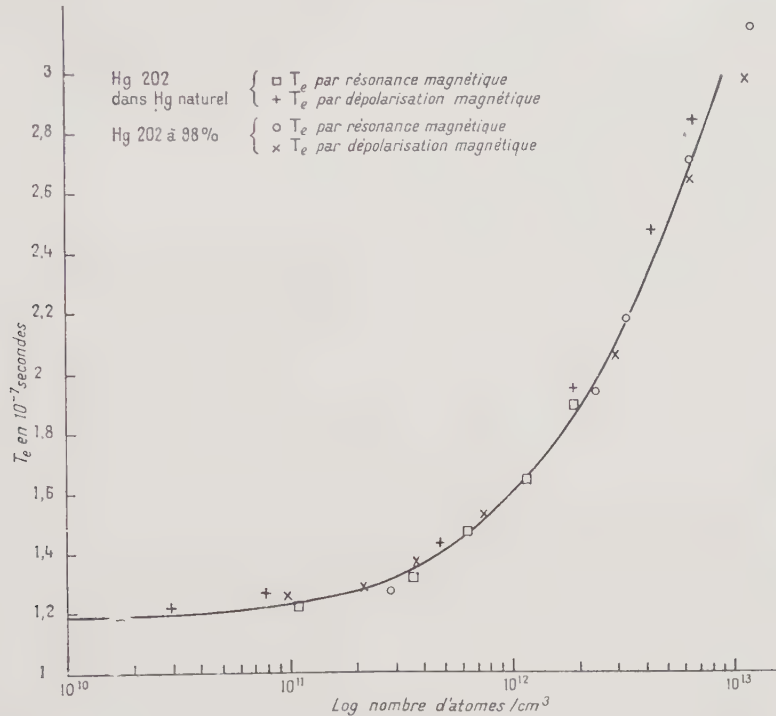


FIG. III,4.

représentant la valeur de τ/T obtenue et la valeur le P_σ correspondante est beaucoup plus près de la courbe théorique.

Aux pressions de vapeur plus élevées, les mesures devenaient beaucoup plus difficiles : le taux de polarisation devient en effet très faible et le signal de résonance magnétique n'est plus qu'une faible fraction du signal de résonance optique ; le rapport signal sur bruit devient très médiocre et il est nécessaire d'utiliser un dispositif électronique. Seules des mesures de T ont été effectuées, à la fréquence de 14,48 MHz, les mesures de P_σ étant trop imprécises. Nous n'avons opéré que sur une cellule contenant l'isotope ^{202}Hg presque pur ; la précision des mesures était très médiocre, il est difficile de décider si les désaccords observés entre les réseaux de courbes de résonance expérimentales et la formule II,27 de Majorana-Brossel étaient

réels ou seulement dus aux erreurs accidentelles. En tout cas, la largeur limite permettait de déduire une valeur de T et de τ/T . Les quelques mesures faites ont montré que T ne dépassait pas la valeur maximum $(10/3)\tau$ donnée par la théorie. Pour $N > 3 \cdot 10^{13}$, T décroît très rapidement quand N croît, c'est-à-dire que les raies s'élargissent. Nous n'avons pas cherché à étudier en détail ce phénomène. Il est possible que l'effet soit dû encore à la diffusion multiple ; la validité des approximations faites dans la théorie de l'effet est beaucoup moins sûre dans cette zone de pressions de vapeur (en particulier R n'est plus très supérieur à Λ). Si au contraire on attribue cet effet à des collisions entre atomes excités et atomes dans l'état fondamental, on peut admettre en première approximation que la largeur limite est la somme des largeurs $(3/10)(1/\tau)$ due à la diffusion multiple et $1/\tau_c$ due

aux collisions, (τ_c était le temps moyen entre collisions). De τ_c on peut déduire le libre parcours moyen et la section efficace σ^2 que l'on trouve de l'ordre de $8 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2$. Cette valeur est 8 fois plus grande que celle donnée par Holstein pour les collisions $^{198}\text{Hg} - ^{199}\text{Hg}$ [13]. Cet ordre de grandeur semble donc raisonnable. Des investigations ultérieures dans ce domaine de pressions de vapeur seraient souhaitables ; en particulier des mesures faites en excitant ^{202}Hg dans le mercure naturel permettraient d'étudier le rôle des collisions entre isotopes différents.

3. Résonance magnétique et dépolarisation magnétique dans le cas des isotopes pairs [6, 8, 9]. —

En utilisant 2 cellules identiques, les mêmes que dans les expériences décrites ci-dessus, contenant l'une du mercure naturel et l'autre un mélange enrichi en ^{202}Hg , nous avons effectué des mesures comparées de T en fonction de N par les 2 méthodes de résonance magnétique et de dépolarisation magnétique (cf. II, paragr. 3). Le taux de polarisation P en fonction du champ H_0 satisfait bien aux diverses valeurs de N à une loi du type

$$P = \frac{P_0}{1 + 4\omega_0^2 T^2} \quad (\text{III}, 1) \quad \text{avec} \quad \omega_0 = \gamma H_0.$$

Les mesures de T par la résonance magnétique ont été effectuées à la fréquence de 144 MHz. (Les conditions géométriques étaient aussi voisines que possibles, dans les 2 types de mesures, de celles des expériences décrites au paragr. 2.) La figure III,4 représente en fonction de N les diverses valeurs de T obtenues. Tous les points se groupent bien autour d'une même courbe, conformément au résultat théorique (d'après lequel les 2 méthodes doivent fournir la même valeur de T). L'accord entre la théorie et l'expérience est ici excellent. Notons toutefois les points de désaccord suivant :

a) P_0 , valeur en P en champ H_0 nul, est calculable théoriquement à partir de x , lui-même déterminé par le rapport τ/T ; or là encore, les valeurs expérimentales sont plus faibles que les valeurs théoriques et ne tendent pas vers 100 pour N très faible ; en outre il est ici impossible de concilier les résultats théoriques et expérimentaux en faisant subir à ces derniers une correction analogue à celle du paragr. 2 (multiplication par un facteur constant). La raison de ce désaccord n'est pas comprise. Par contre, conformément aux prévisions, P_π et P_0 ont la même valeur pour une valeur de N donnée.

b) A forte concentration ($N = 2 \cdot 10^{13} \text{ atomes/cm}^3$), la résonance magnétique donne $T = 3,40 \cdot 10^{-7} \text{ sec}$ et la dépolarisation magnétique $T < 3 \cdot 10^{-7} \text{ sec}$. Il est difficile de préciser s'il s'agit d'un désaccord réel ou si les mesures dans cette zone de pressions sont fortement erronées

(P_0 étant faible, les mesures de T par mesure de P sont peu sûres). C'est pourquoi les mesures n'ont pas été poursuivies aux pressions de vapeur plus élevées.

4) Étude d'effets dépendant de la géométrie. —

Quelques effets dépendant de la géométrie du montage ont été étudiés en utilisant une cellule de dimensions plus grandes que les cellules usuelles (cube de 4,2 cm d'arête) contenant du mercure naturel dans lequel on excitait sélectivement l'isotope ^{202}Hg . Au lieu d'utiliser un faisceau d'excitation parallèle, on formait l'image de la lampe à l'intérieur de la cellule, soit au niveau des diaphragmes de détection (position I de la lampe), soit dans une autre région bien déterminée de la cellule (position II de la lampe) de telle sorte que le faisceau exciteur ne passe pas au niveau de ces diaphragmes. En principe, lorsque la lampe était en position II, les photomultiplicateurs n'auraient pas dû recevoir de photons résultant d'un phénomène de résonance optique simple (diffusion simple), mais uniquement des photons ayant été diffusés 2 fois au moins. En pratique, il y a toujours réflexion et diffusion par les parois de la cellule de la lumière incidente et de la lumière de résonance optique simple ; celle-ci arrivait donc malgré tout aux photomultiplicateurs, mais son intensité était considérablement réduite. Grossièrement, on pouvait prévoir des raies de résonance magnétique résultant de la différence de 2 raies de Majorana-Brossel, l'une correspondant à la superposition de tous les ordres de diffusion multiple, l'autre (avec la largeur naturelle $1/\tau$) à la diffusion simple, dont les amplitudes relatives étaient *a priori* inconnues. Dans ces conditions, aucune vérification quantitative de la forme de raie n'a été entreprise. Nous nous sommes contentés de mesurer en fonction de N les largeurs limites pour H_1 nul des réseaux obtenus avec la lampe en position I et II ; on en déduisait des paramètres T_I et T_{II} et on constate que $T_{II} > T_I$ à la même valeur de N (fig. III,5). En outre, les réseaux de type II ne peuvent absolument pas être représentés par une formule de Majorana-Brossel. Ces résultats sont qualitativement conformes aux prévisions ; il semble impossible de comprendre autrement que par la diffusion multiple (par exemple par l'intervention de collisions) ces effets qui dépendent uniquement de la géométrie du montage.

5. Expériences de diffusion double [7, 8, 9]. —

Pour confirmer de façon particulièrement frappante l'interprétation donnée, nous avons étudié les formes des raies de résonance magnétique dans le cas où tous les photons de résonance optique ont été diffusés 2 fois par les atomes soumis à la résonance magnétique. Dans cette expérience nous utilisons 2 cellules cubiques de 2,4 cm d'arête, juxta-

posées ; la droite joignant leurs centres est perpendiculaire au champ magnétique statique H_0 . Les cellules sont remplies de mercure naturel dans lequel on excite l'isotope ^{202}Hg . Des diaphragmes permettent de n'exciter optiquement que la cellule I, mais de n'observer que la lumière de résonance optique réémise par la cellule II. La pression de vapeur est telle dans chaque cellule que la diffusion multiple y est négligeable devant la diffusion simple (température du queusot inférieure à -20°C ,

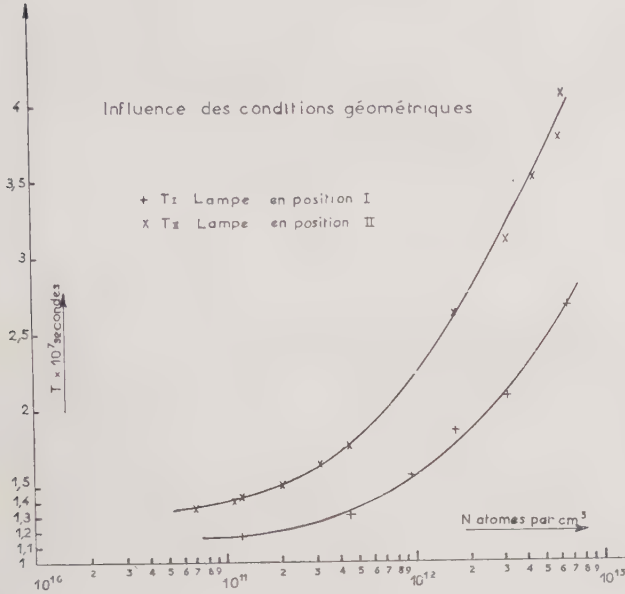


FIG. III,5.

c'est-à-dire $N < 2 \cdot 10^{11}$ atomes par cm^3). Ainsi les photons observés issus de la cellule II illuminée par la résonance optique de la cellule I ont été diffusés 2 fois et 2 fois seulement. En condensant dans l'azote liquide le mercure d'une seule cellule, on constate toutefois que le signal ne s'annule pas complètement, en raison de diffusions et de réflexions parasites ; le signal résiduel est très faible et constitue une petite correction aux résultats bruts des mesures

Ainsi que nous l'avons vu (cf. II, paragr. 3, Remarque), si la droite joignant les 2 atomes qui diffusent successivement le même photon a une répartition isotrope dans l'espace (c'est pratiquement le cas pour 2 cellules très voisines) la contribution de la diffusion double à la raie de résonance magnétique est proportionnelle à (II,26)

$$B^{(2)}(\Omega, \gamma H_1, \tau) = \frac{\partial}{\partial \tau} [\tau B(\Omega, \gamma H_1, \tau)]. \quad (\text{III},2)$$

La largeur limite des courbes théoriques pour H_1 nul correspond à une valeur $T_2 = 1,47 \tau = 1,74 \cdot 10^{-7}$ sec. La largeur ΔH est donnée en fonction de H_1 par :

$$\Delta H^2 = 0,46 \times \frac{4}{\gamma^2 \tau^2} [1 + 11,77 (\gamma H_1 \tau)^2]. \quad (\text{III},3)$$

D'autre part, l'amplitude à la résonance est

$$B^{(2)}(0, \gamma H_1, \tau) = B^{(2)}(0) = \frac{K \rho^2 (4\rho^2 + 3)}{(4\rho^2 + 1)^2}. \quad (\text{III},4)$$

Elle présente un maximum quand H_1 croît, puis tend vers sa limite en décroissant ; la courbe $y^{(2)} = \frac{H_1^2}{B^{(2)}(0)}$ en fonction de H_1^2 a l'allure d'une parabole.

Nous avons tracé 5 réseaux expérimentaux de courbes de résonance en diffusion double. Les valeurs obtenues pour $T_2 \times 10^7$ ont été :

1,69 ; 1,70 ; 1,71 ; 1,77 ; 1,73 secondes.

Sur la figure (III,6), les courbes d'un réseau théorique sont comparées aux points expérimentaux ; H_1 étant mesuré en valeur relative, 2 paramètres seulement sont nécessaires pour ajuster le réseau théorique au réseau expérimental (la valeur absolue de H_1 pour une courbe et un facteur multiplicatif d'ensemble). L'accord est bon et les faibles désaccords peuvent être attribués au caractère non parfaitement isotrope de la diffusion double dans notre expérience. La diminution de $B_2(0)$ quand H_1 devient très grand a été également observée. Ainsi les courbes ne peuvent absolument pas être représentées par la formule de Majorana-Brossel, mais sont bien représentées par la formule (III,2).

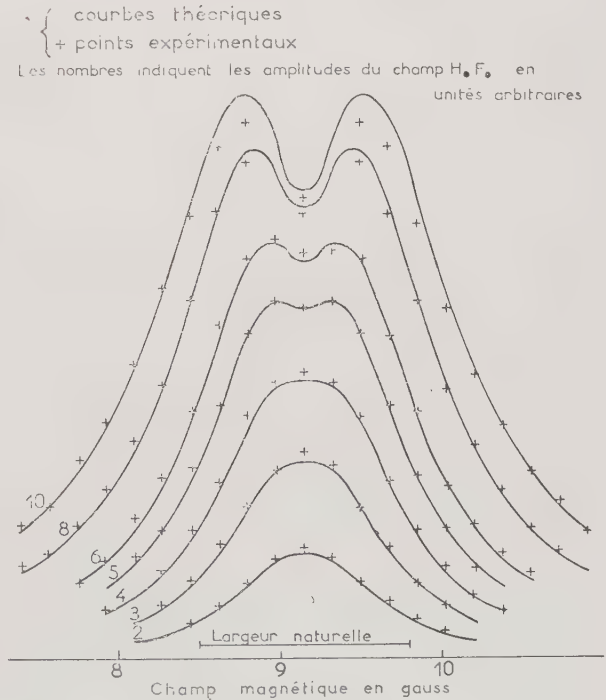


FIG. III,6.

L'importance de la cohérence de phase sur la forme des raies se manifeste également si l'on inter-

pose une lame de quartz cristallin entre les 2 cellules. Les rayonnements π et σ émis par la cellule I sont perturbés (en différence de phase et dans leur état de polarisation) de façon différente avant d'exciter les atomes de la cellule II. Les formes des raies de résonance magnétique sont considérablement modifiées. Il est nécessaire pour introduire la lame d'écarter légèrement les 2 cellules. Le champ magnétique est alors insuffisamment uniforme sur le volume qu'elles occupent et les raies peuvent devenir nettement dissymétriques. Les expériences ne peuvent être que qualitatives et nous avons opéré avec les 2 gouttes de mercure à 0 °C. Le signal est ainsi rendu plus grand, mais la diffusion multiple est très appréciable dans chaque cellule.

6. Résonance magnétique de l'ensemble des isotopes pairs dans le mercure naturel. — Les premières expériences de Brossel [12] puis de Blamont [4] portaient sur la résonance magnétique des isotopes pairs dans le mercure naturel, l'excitation optique venant d'une source à mercure naturel (arc Gallois) se rapprochant des conditions d'émission « broad line » ou « narrow line » selon les cas. Or nous savons maintenant que l'excitation sélective d'un isotope pair dans un mélange isotopique donne des courbes de résonance magnétique ayant la forme de Majorana-Brossel et que chaque isotope se comporte dans le mélange comme s'il était seul. Les courbes observées par Brossel et Blamont ne peuvent donc être que la superposition par addition des courbes correspondant à l'excitation sélective de chaque isotope ; le réseau observé doit être la superposition par addition d'autant de réseaux qu'il y a d'isotopes pairs avec des valeurs de T différentes. Or Brossel et Blamont avaient trouvé des réseaux de courbes en excellent accord avec la forme théorique de Majorana-Brossel. Ce résultat doit être considéré comme une coïncidence ; il doit être en effet très difficile, pratiquement impossible, de distinguer entre un véritable réseau de Majorana-Brossel et un réseau résultant de la superposition par addition de plusieurs autres ayant des argeurs limites assez voisines. Cette interprétation a été vérifiée par M. A. Guiochon [4, 9]. Nous renvoyons, pour le détail de la vérification, aux publications précédentes. L'accord entre les prévisions et les résultats expérimentaux est excellent.

7. Résonance magnétique sur le niveau $F=3/2$ de l'isotope ^{199}Hg (1). — Le spin nucléaire de l'isotope ^{199}Hg est $I=1/2$. Le niveau 6^3P_1 est décomposé en 2 niveaux hyperfins, avec les nombres quantiques $F=1/2$ et $F=3/2$; la structure hyperfine est $\eta \simeq 22\,000$ MHz. En champ magné-

tique faible et en excitation lumineuse σ la résonance magnétique n'est observable que sur le niveau $F=3/2$; le calcul des effets de la diffusion multiple n'a été fait que dans le cas des champs très faibles, lorsque la largeur naturelle des sous-niveaux Zeeman est grande devant les écarts à l'équidistance dus au découplage I, J . Les distances des sous-niveaux $F=3/2$ sont données par les formules valables au 2^e ordre près en ν'/η :

$$\begin{cases} \nu \left(+\frac{3}{2} \rightleftharpoons +\frac{1}{2} \right) \simeq \nu' \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\nu'}{\eta} \right) \\ \nu \left(-\frac{1}{2} \rightleftharpoons +\frac{1}{2} \right) \simeq \nu'. \end{cases} \quad (\text{III},5)$$

où $\nu' = \frac{eH_0}{4\pi mc}$ (III,6), fréquence de Larmor dans

le champ H_0 . La distance des résonances extrêmes $\delta\nu = \nu'^2/\eta$ à la fréquence de 14,48 MHz choisie est 9,6 kHz, soit 7.10^{-3} de la largeur naturelle de la raie. Les effets de l'écartement des résonances sont du second ordre en $\pi T \delta\nu$, lui-même de l'ordre de 5.10^{-3} , et peuvent être alors négligés.

Mais à cette fréquence, la distance des raies des isotopes pairs et du niveau $F=3/2$ de l'isotope ^{199}Hg est de l'ordre de leurs largeurs. Dans les conditions d'excitation optique utilisées (mélange enrichi en ^{199}Hg , excité par une lampe contenant ce mélange, en présence de filtres contenant des mélanges enrichis en ^{199}Hg , ^{200}Hg et ^{201}Hg), l'intensité de la raie des isotopes pairs restait de l'ordre de 1/10 de celle du ^{199}Hg , et rendait celle-ci dissymétrique. Une correction était nécessaire dont le détail est donné dans les références 5 et 9.

Les mesures de résonance magnétique étaient en général difficiles. Le rapport signal sur bruit, de l'ordre de 40 aux basses pressions de vapeur, diminuait jusqu'à 4 ou 3 aux pressions les plus élevées atteintes (pour lesquelles $N \simeq 2.10^{13}$). Cette diminution est liée à celles du taux de polarisation et du rapport de la résonance magnétique au signal de résonance optique. Dans la limite des erreurs, les réseaux de courbes de résonance expérimentales satisfont bien à une loi de Majorana-Brossel. Nous estimons que la précision des mesures de T resté de l'ordre de 3 à 4 %, sauf aux pressions de vapeur les plus élevées où elle est assurément moins bonne.

La valeur limite de $T_{I=1/2, F=3/2}$ pour N très faible est bien la même ($\tau = 1,18.10^{-7}$ sec) que dans le cas des isotopes pairs, considérée comme la durée de vie vraie du niveau 6^3P_1 . La courbe donnant $T_{I=0, F=1}$ en fonction de N (dans le cas des isotopes pairs) avec les conditions géométriques de ce montage a été également tracée (par excitation sélective de ^{199}Hg ou ^{200}Hg dans le mélange). Des valeurs expérimentales de $T_{I=0, F=1}$ et des formules du tableau 1 donné dans II se déduisent les valeurs attendues pour $T_{I=1/2, F=3/2}$.

(1) Les mesures ont été effectuées par M^{lle} F. Boutron [5].

$$T_{I=1/2, F=3/2}(N) = \frac{2\tau T_{I=0, F=1}(2N/3)}{\tau + T_{I=0, F=1}(2N/3)} \quad (\text{III},7)$$

La figure III,7 permet de les comparer aux valeurs expérimentales. L'accord est satisfaisant.

Nous avons mesuré également le taux de polarisation P_σ de la lumière de résonance optique. En supposant que l'excitation lumineuse a la même intensité sur les 2 composantes hyperfines de la raie du ^{199}Hg (excitation de type « broad line »), on peut calculer à partir des valeurs expérimentales

de $T_{I=0, F=1}$ les valeurs attendues pour P_σ (cf. II, tableau 2) ; l'accord est encore suffisamment bon, étant donné l'imprécision des mesures et les approximations faites.

8) **Résonance magnétique sur le niveau $F = 5/2$ de l'isotope ^{201}Hg [5, 8, 9].** — Le spin nucléaire de cet isotope est $I = 3/2$. La distance des sous-niveaux hyperfins $F = 5/2$ et $F = 3/2$ est $\eta \simeq 14\,000$ MHz. Les distances des sous-niveaux

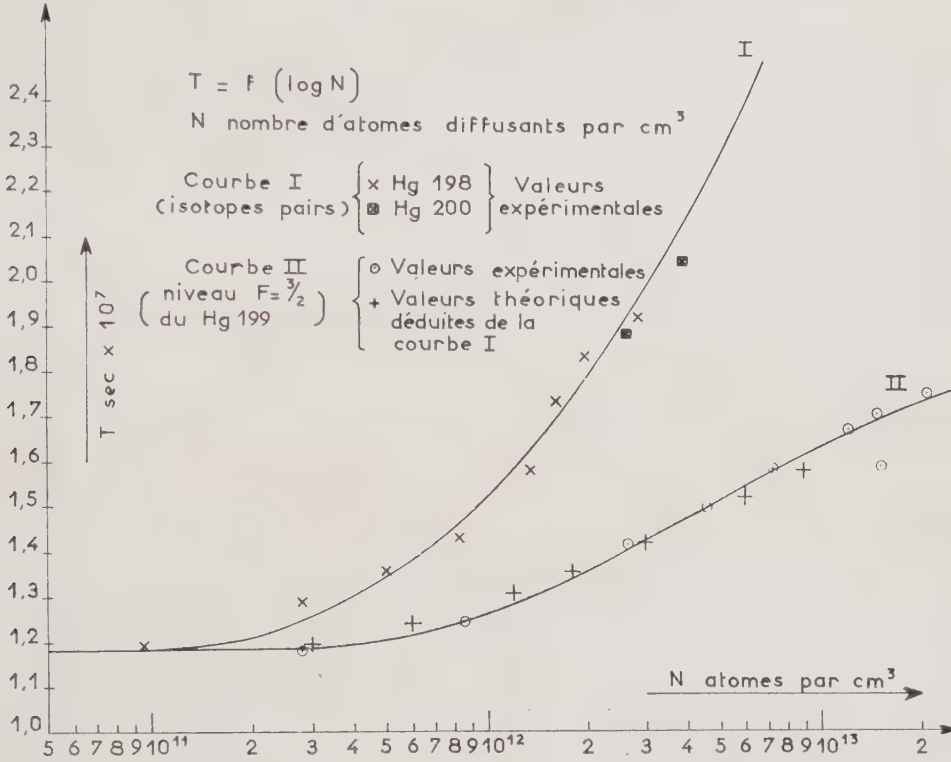


FIG. III,7.

Zeeman du niveau $F = 5/2$ sont données par les formules valables au 2^e ordre près en ν'/η .

$$\begin{cases} \nu\left(\pm \frac{5}{2} \rightleftharpoons \pm \frac{3}{2}\right) \simeq \frac{3}{5} \nu' \left(1 \pm \frac{9}{10} \frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(\pm \frac{3}{2} \rightleftharpoons \pm \frac{1}{2}\right) \simeq \frac{3}{5} \nu' \left(1 \pm \frac{9}{20} \frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(-\frac{1}{2} \rightleftharpoons +\frac{1}{2}\right) \simeq \frac{3}{5} \nu' \end{cases} \quad (\text{III},8)$$

ν' étant donné par (III,6).

A la fréquence choisie de 14,48 MHz, l'écart à l'équidistance des niveaux lorsque le champ magnétique a la valeur de résonance n'est que $1,7 \cdot 10^{-2}$ de la largeur naturelle d'un sous-niveau. On peut donc s'attendre encore dans ce cas à la validité des résultats de II : la raie doit avoir la forme de Majorana-

Brossel, la durée de cohérence $T_{I=3/2, F=5/2}$ étant liée par la formule

$$T_{I=3/2, F=5/2} = \frac{25 \tau T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{2}\right)}{7\tau + 18 T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{2}\right)} \quad (\text{III},9)$$

à la durée de cohérence $T_{I=0, F=1}$ des isotopes pairs.

Le mélange isotopique utilisé était enrichi en ^{201}Hg contenant 1,2 % de ^{204}Hg . La source lumineuse contenait un mélange enrichi à 98 % en ^{204}Hg ; elle excitait ainsi sélectivement le niveau $F = 5/2$ de l'isotope ^{201}Hg et le ^{204}Hg présent dans la cellule [10]. On observe donc à la fois les 2 signaux de résonance magnétique correspondants. Il y a encore dans ce cas recouvrement

partiel entre les ailes des 2 raies qui sont rendues légèrement dissymétrique. Une correction est donc nécessaire pour déterminer la durée de cohérence cherchée de l'isotope ^{201}Hg . Le détail en a été donné dans les publications antérieures [5, 9].

Le rapport signal sur bruit était légèrement supérieur à celui que l'on observait dans le cas de l'isotope ^{199}Hg . Mais les dérives des signaux étaient considérables étant donné les instabilités de la lampe employée, et les corrections effectuées sont peu sûres. Nous estimons que la précision est du même ordre que dans le cas de l'isotope ^{199}Hg .

Les réseaux corrigés obtenus satisfaisaient bien à la formule de Majorana-Brossel. La figure III,8 résume les résultats ; nous avons mesuré sur la même cellule $T_{I=0, F=1}$ en fonction de N par excitation sélective de l'isotope ^{202}Hg et la formule (III,9) donne les valeurs attendues pour $T_{I=3/2, F=5/2}$, en bon accord avec les résultats expérimentaux. La valeur limite aux basses pressions de vapeur est encore $\tau = 1,18 \cdot 10^{-7}$ sec.

9. Résonance magnétique sur le niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{201}Hg . — Les fréquences des transitions

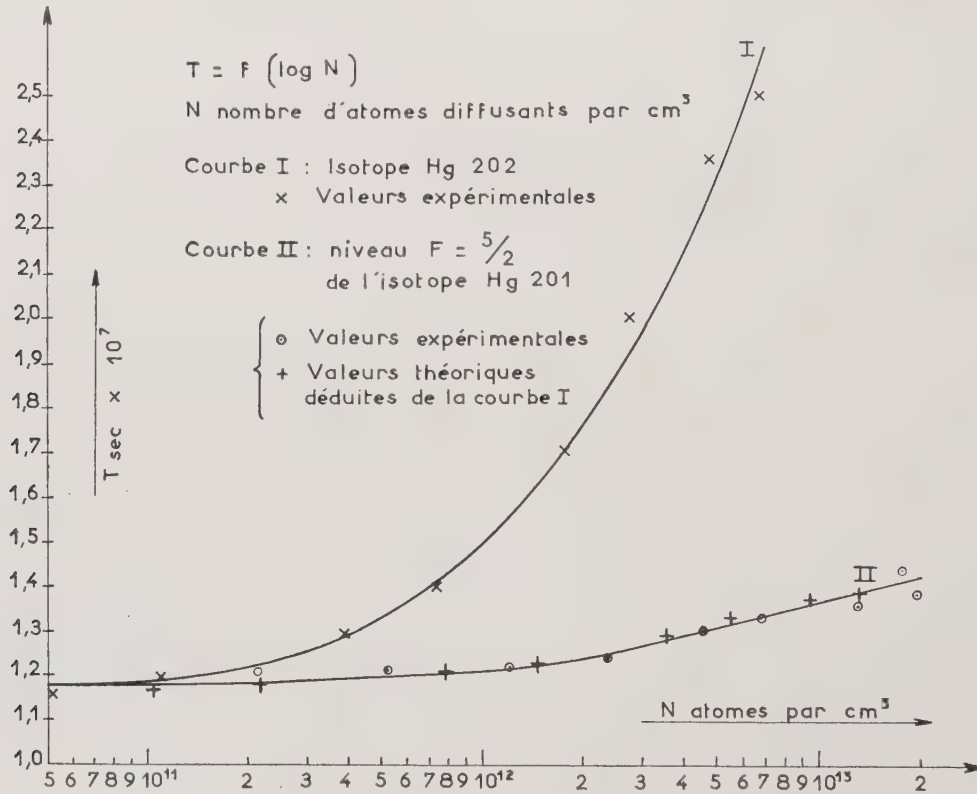


FIG. III,8.

sont données cette fois par

$$\begin{cases} \nu \left(\pm \frac{3}{2} \rightarrow \pm \frac{1}{2} \right) \simeq \frac{2}{5} \nu' \left(1 \pm \frac{68}{15} \frac{\nu'}{\eta} \right) \\ \nu \left(+ \frac{1}{2} \rightarrow - \frac{1}{2} \right) \simeq \frac{2}{5} \nu'. \end{cases} \quad (\text{III},10)$$

L'excitation sélective de la composante hyperfine correspondante et de la composante de l'isotope ^{198}Hg présent dans la cellule se fait à l'aide d'une lampe contenant l'isotope ^{198}Hg pratiquement pur. Les conditions des mesures sont les mêmes que dans le cas du niveau $F = 5/2$ et les corrections nécessaires sont faites de la même manière.

Une différence importante existe cependant : aux fréquences utilisées qui séparent de manière suffisante la raie de l'isotope pair ^{198}Hg et celle du niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{201}Hg que l'on étudie, les champs résonnants sont assez grands pour que le découplage I, J ne soit plus négligeable dans ce niveau. L'écart des niveaux à l'équidistance vaut aux 3 fréquences utilisées (11,9 MHz, 14,48 MHz et 19 MHz) respectivement 1,4 %, 2 % et 3,5 % de la largeur naturelle de la raie. Dans ce cas, le calcul de la forme de raie est inextricable, même en l'absence de diffusion multiple. Nous avons constaté que les réseaux obtenus différaient légèrement de réseaux de Majorana-Brossel. Les largeurs

limites donnaient des valeurs de T plus petites que les valeurs prévues théoriquement par la formule

$$T_{I=3/2, F=3/2} = \frac{25\tau T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{3}\right)}{8\tau + 17 T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{3}\right)} \quad (\text{III}, 11)$$

(élargissement par le découplage I, J). L'écartement augmente à une pression de vapeur déterminée quand la fréquence augmente, et semble augmenter à fréquence fixe avec la pression de vapeur (cette dernière augmentation est à la limite des erreurs de mesure) (cf. fig. III,9).

En l'absence de diffusion multiple, on peut montrer qu'aux très faibles niveaux de radio-fréquence (H_1 étant considéré comme une très faible perturbation) la raie observée doit être une superposition par addition de 2 raies de Lorentz,

ayant la largeur naturelle, centrées sur les champs résonnants des transitions $m = \pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$. On s'attend alors à une largeur limite

$$\Delta\omega = \frac{2}{\tau} \left[1 + \frac{1}{6} \left(\frac{68 \pi \nu^2}{\eta \Gamma} \right)^2 \right].$$

Il en résulte une durée de vie apparente lorsque la fréquence résonnante est ν : $\tau_\nu \simeq \tau(1 + \alpha \nu^4)$ avec théoriquement $\alpha = -0,56 \cdot 10^{-6}$, ν étant exprimé en MHz. Les 3 valeurs obtenues pour τ_ν aux faibles valeurs de N aux 3 fréquences choisies ont permis de déterminer τ et α expérimentalement par la méthode des moindres carrés. Nous avons trouvé $\tau = 1,18 \cdot 10^{-7}$ sec et $\alpha = -0,78 \cdot 10^{-6}$. La durée de vie vraie du niveau a bien la valeur prévue et nous estimons satisfaisant l'accord des 2 valeurs de α .

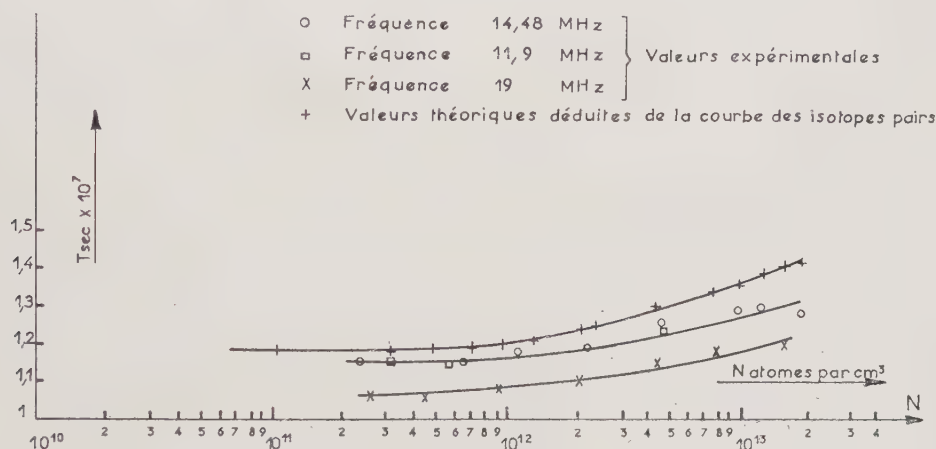


FIG. III,9. $T = f(\log N)$, N , nombre d'atomes diffusants par cm^3 . Isotope ^{201}Hg , Niveau $F = 3/2$.

10. Dépolarisation magnétique dans le cas de l'isotope ^{201}Hg . — Avec le mélange isotopique utilisé dans les mesures de résonance magnétique il est pratiquement impossible de mesurer T par la méthode de dépolarisation magnétique dans le cas de l'isotope ^{201}Hg . En effet, si l'on excite sélectivement les niveaux $F = 3/2$ et $F = 5/2$ au moyen de sources enrichies en ^{198}Hg et ^{204}Hg respectivement, la résonance optique observée résulte de la diffusion des photons par l'isotope pair et l'isotope ^{201}Hg à étudier. La courbe donnant le taux de polarisation P en fonction du champ H_0 autour de la valeur $H_0 = 0$ résulte de la superposition des courbes des deux isotopes ; chacun a une largeur différente (pour T donné, la largeur est inversement proportionnelle au facteur de Landé g) et la largeur de la courbe observée ne permet pas d'obtenir de renseignements sur les isotopes pris séparément. Nous avons tenté les mesures avec un mélange isotopique fourni par le C. E. A. qui

contient un pourcentage particulièrement faible des isotopes ^{204}Hg et ^{198}Hg .

Les résultats ont été satisfaisants dans l'ensemble, bien que perturbés encore par la présence de l'isotope pair, principalement aux pressions de vapeur élevées (la lumière de résonance de l'isotope impair étant presque totalement dépolarisée, celle de l'isotope pair prend de plus en plus d'importance quand la pression de vapeur augmente).

Conclusion. — Nous estimons, en résumé, avoir établi les faits suivants :

— Dans le cas du mercure, et au moins dans la zone de densités de vapeur étudiée ($10^{10} < N < 2 \text{ à } 3 \cdot 10^{13}$ atomes par cm^3), la diffusion multiple des photons de la raie de résonance $2537 \text{ \AA}$ est responsable quand N augmente : a) de l'affinement des raies de résonance magnétique observé ; b) de l'affinement des courbes de dépolarisation magnétique en champ magnétique faible et de l'augmen-

tation de la durée de vie apparente T du niveau $6\ ^3P_1$ mesurée par ces deux méthodes ; c) de la diminution du taux de polarisation P de la lumière de résonance optique.

— Dans les conditions précédentes, les collisions interatomiques n'interviennent pas dans ces divers effets.

— La théorie développée permet de rendre compte qualitativement et quantitativement de ces effets moyennant un certain nombre d'approximations et de simplifications. En particulier, nous avons obtenu des formules reliant entre elles les grandeurs T et P correspondant aux différents niveaux hyperfins des isotopes du mercure. Les résultats expérimentaux sont en général en bon accord avec les prévisions théoriques.

— La durée de vie vraie du niveau $6\ ^3P_1$ est $\tau = (1,18 \pm 0,02) \cdot 10^{-7}$ sec, la même pour tous les niveaux hyperfins de tous les isotopes étudiés.

Dans le cas particulier où l'on isole des photons ayant été diffusés deux fois par les atomes de mercure, la forme de la raie de résonance magnétique observée et sa largeur sont celles que prévoient les résultats théoriques.

— Si l'on excite le mélange d'isotopes pairs contenu dans le mercure naturel par une source contenant ce même mélange, la forme de la raie ne peut être pratiquement distinguée d'une forme théorique de Majorana-Brossel, ce qui permet de comprendre les résultats de Brossel et de Blamont.

Pratiquement, peu d'applications de ces résultats peuvent être envisagées. Il est difficile de se servir de l'affinement des raies pour améliorer la précision de la mesure du rapport gyromagnétique du niveau $6\ ^3P_1$ du mercure : lorsque la largeur des raies devient 2 ou 3 fois plus petite que la largeur naturelle du niveau, le rapport signal sur bruit devient très mauvais et la mesure devient plutôt moins précise. Un optimum de précision semble atteint pour une densité de vapeur correspondant à une température du queusot voisine de $0\ ^\circ\text{C}$; ce sont les conditions expérimentales utilisées par Brossel dont nous n'avons pas tenté d'améliorer le résultat.

Nous noterons aussi que l'importance particulière du phénomène dans le cas des isotopes pairs du mercure est liée à l'existence d'un niveau fondamental dans lequel $J = 0$. Il en résulte d'une part une valeur en général assez élevée du taux de polarisation, même lorsque la diffusion multiple est importante, ce qui rend les mesures relativement faciles. D'autre part, on conçoit physiquement que l'absence de structure Zeeman dans l'état fondamental facilite les effets de cohérence dans la diffusion multiple, si bien que l'affinement de la raie

est très important. Avec un isotope impair, un atome peut tomber dans le sous-niveau Zeeman $|\mu\rangle$ en émettant un photon qui excite un 2^e atome situé primitivement dans le sous-niveau Zeeman $|\mu'\rangle$; si $\mu' \neq \mu$, il est clair qu'un tel processus a beaucoup moins de chances de maintenir la cohérence et de contribuer à l'affinement de la raie que si $\mu' = \mu$. La théorie (cf. II, tableau 1), en accord avec l'expérience (cf. III), prévoit effectivement une augmentation de la durée de cohérence beaucoup plus importante dans le cas des isotopes pairs que dans le cas des isotopes à spin nucléaire. Par contre, la diminution du taux de polarisation est plus rapide pour les isotopes impairs, et les mesures sont beaucoup plus difficiles.

Il en résulte en particulier qu'il semble difficile d'étendre les applications de ces résultats à d'autres éléments que le mercure ou ceux du groupe II de la classification périodique. Pour les éléments tels que les métaux alcalins, dont les moments angulaires sont élevés dans le niveau fondamental et le niveau excité, l'effet n'est sans doute pas aussi important. Notons en outre que les hypothèses faites au cours de notre calcul ne sont généralement plus valables dans ce cas (par exemple la structure hyperfine peut être inférieure à l'effet Doppler ou être du même ordre, si bien que les diverses composantes hyperfines ne sont pas bien isolées dans le spectre). Toutefois, nous pensons utile de faire remarquer que des effets de cohérence, analogues à ceux que nous avons observés, pourront se produire chaque fois qu'une excitation passera par l'intermédiaire du rayonnement électromagnétique d'un système atomique à un autre identique, dans des cas beaucoup plus généraux que celui du rayonnement de résonance (propagation des excitons dans les solides par exemple). Mais il faudra, pour observer ces effets, réaliser des conditions telles que la fonction d'onde de chaque système soit une superposition cohérente des différents états propres de l'énergie.

Il serait souhaitable également d'étendre les calculs et les résultats expérimentaux au cas où l'effet Zeeman devient grand devant la largeur Doppler de la raie optique (isotopes pairs du mercure en champ magnétique intense), — ou dans le cas de niveaux non équidistants (isotopes impairs en champ moyen ou cas de l'effet Stark, même pour les isotopes pairs) — et enfin dans le cas où on étudie des transitions hyperfines $\Delta F = 1$. Nous pensons aussi que l'étude des élargissements de raie que l'on observe aux pressions de vapeur élevées mérite d'être développée, permettant ainsi de confirmer la réalité de cet effet et d'en déterminer l'origine.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Voir chapitre I, désigné dans la suite par I.
- [2] Voir chapitre II, désigné dans la suite par II.
- [3] ROLLET (N.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1955. ROLLET (N.), BROSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 240.
- [4] GUIOCHON (M. A.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1956. BLAMONT (J. E.), *Thèse*, 1957 ; *Ann. Physique*, 1957, **2**, 551. GUIOCHON (M. A.), BLAMONT (J. E.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1859 ; *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 99.
- [5] BOUTRON (F.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1957. BOUTRON (F.), BARRAT (J. P.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 2250.
- [6] BARRAT (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957 **244**, 2785.
- [7] BARRAT (J. P.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744.
- [8] BARRAT (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 858.
- [9] BARRAT (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959, n° de microfilm C. N. R. S., 38808.
- [10] SCHULER (H.) et KEYSTON (J. E.), *Z. Physik*, 1931, **72**, 423. SCHULER (H.) et JONES (E. G.), *Z. Physik*, 1932, **74**, 631. BITTER (F.), *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1531. SAGALYN (P.), MELISSINOS (A. C.) et BITTER (F.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 375.
- [11] Voir MITCHELL et ZEMANSKY, "Resonance Radiation and Excited Atoms", ch. V.
- [12] BROSSEL (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
- [13] HOLSTEIN (T.), ALPERT (D.) et MCCOUBREY (A. O.), *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 985.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Détermination du moment magnétique du méson μ .

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 15 mars 1959.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

J. PÉRÈS.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

Le Recteur de l'Académie de Paris,

Jean SARRAILH.

